

國立交通大學

物理研究所

碩士論文

鋁/氧化鋁/鈮穿隧接點之二雜質近藤效應

Two-impurity Kondo Effect in Al/AlO_x/Y Tunnel Junctions



研究生：王大衛

指導教授：林志忠 教授

中華民國九十八年七月

鋁/氧化鋁/鈮穿隧接點之二雜質近藤效應

Two-impurity Kondo Effect in Al/AlO_x/Y Tunnel Junctions

研 究 生：王大衛

Student : Da-Wei Wang

指 導 教 授：林志忠

Advisor : Juhn-Jong Lin

國 立 交 通 大 學

物 理 研 究 所

碩 士 論 文

A Thesis

Submitted to Institute of Physics

College of Science

National Chiao Tung University

in partial Fulfillment of the Requirements

for the Degree of

Master

in

Physics

July 2009

Hsinchu, Taiwan, Republic of China

中華民國九十八年七月

鋁/氧化鋁/鈮穿隧接點之二雜質近藤效應

學生：王大衛

指導教授：林志忠 教授

國立交通大學物理研究所碩士班

摘 要

我們量測五個不同室溫電阻值的鋁/氧化鋁/鈮穿隧接點的微分電導 $G(V, T)$ 行為，量測溫度範圍約 35-2.2 K，我們只專注於討論其中三個電阻值較小的穿隧接點(樣品編號 A、B 與 C)。當溫度低於約 30 K 後，零偏壓電導 $G(0, T)$ 不再反映出絕緣性行為，取而代之地表現出反常行為：當溫度 $\sim 30-4$ K， $G(0, T)$ 隨溫度降低而上升，隨後當溫度低於 ~ 4 K， $G(0, T)$ 轉變為隨溫度降低而下降， $G(0, T)$ 對溫度為一非單調行為。

其中，當溫度 $\sim 23-11$ K (高溫區域)， $G(0, T)$ 為 $-\log T$ 的依存，且 $G(V, T)$ 符合 Appelbaum 在弱耦合區域近藤效應理論的描述。當溫度降低至 ~ 17 K，其對溫度的依存開始過渡至 $-\sqrt{T}$ ，在溫度 $\sim 17-8$ K (中溫區域) $G(V, T)$ 會遵守一類似二通道近藤效應的 scaling law，我們將此歸因於近藤效應與雜質間反鐵磁耦合之競爭所導致的現象，即我們的樣品反映出二雜質近藤模型的物理架構，其中的雜質為自旋 1/2 的鈮原子($4d^1$)。我們認為可能是在樣品製程中，少量的鈮原子座落或是輕微擴散入氧化鋁/鈮介面，導致在介面存在侷域自旋 1/2 的磁矩。當溫度低於 ~ 4 K， $G(0, T)$ 隨溫度降低而下降，此現象對應到二雜質近藤模型，我們的穿隧接點的基態是落在侷域自旋單重相，為單重態。

另外，我們在 ~ 0.25 K 外加磁場 1-4 T 量測穿隧接點之 Zeeman 分裂行為。由 Zeeman 分裂隨外加磁場的變化，初步分析的結果顯示其基態為三重態。此結果與我們之前的結論不相符。我們到目前為止仍不了解如何解釋此現象，這部分還需再做更進一步的分析與討論。

Two-impurity Kondo Effect in Al/AIO_x/Y Tunnel Junctions

Student : Da-Wei Wang

Advisor : Prof. Juhn-Jong Lin

Institute of Physics
National Chiao Tung University

ABSTRACT

We have measured the differential conductance $G(V,T)$ in five Al/AIO_x/Y tunnel junctions from 35 to 2.2 K, and all of them possess different room temperature resistance. We focus on three of them with smaller resistance (sample# A, B, and C). As the temperature below ~ 30 K, the zero bias conductance $G(0,T)$ behavior crosses over from an insulating to the anomalies: $G(0,T)$ increases with the temperature decreasing between ~ 30 and 4 K, and $G(0,T)$ decreases as the temperature decreases lower than ~ 4 K. $G(0,T)$ presents a non-monotonic behavior with the temperature.

Between ~ 23 and 11 K (high temperature regime), $G(0,T)$ is $-\log T$ dependence, and $G(V,T)$ can be described by the Appelbaum's weak coupling Kondo effect theory. As the temperature decreases to ~ 17 K, $G(0,T)$ starts crossover to $-\sqrt{T}$ dependence, and $G(V,T)$ obeys a scaling law between ~ 17 and 8 K (intermediate temperature regime), which is similar to the two-channel Kondo scaling. We attribute this behavior to a competition between Kondo effect and interimpurity antiferromagnetic coupling, i.e. the two-impurity Kondo physics is observed in our junction system, and the impurities are the spin-1/2 Y atoms (4d¹). We think that a few Y atoms may situate at or slightly diffuse into AlO_x/Y interface during fabrication process, leading to some localized spin-1/2 moments present at the interface. As the temperature decreases lower than ~ 4 K, $G(0,T)$ decreases with decreasing temperature. According to the two-impurity Kondo model, this implies that the ground state of our system is the local spin singlet phase, it is an interimpurity singlet state.

Furthermore, we have measured Zeeman splitting in the magnetic field between 1 and 4 T at ~ 0.25 K. The behavior of Zeeman splitting with variable magnetic field seems to imply that the ground state is triplet. This result is not consistent with the previous conclusion. We still do not understand how to explain it thus far, more analysis and discussion is needed.



誌謝

首先感謝林志忠老師帶領我進入低溫固態物理領域並且提供如此充沛的資源與優質的實驗環境。在老師嚴謹與細心的指導下，使我能夠順利的完成這份研究工作，謝謝老師。

感謝葉勝玄學長對於這份工作的幫助，不論是理論方面的討論或實驗技術上的教學，因為有你的分享與寶貴的意見，總能使我獲益良多，也使這份論文更加充實且完整，真的很感謝你。感謝林永翰學長對於實驗經驗的分享，讓一開始對低溫技術完全不懂的我，可以快速的進入狀況。感謝邱劭斌學長對於實驗上的幫助，因為有你的建議總能適時地幫助我解決問題。感謝黃旭明學長，在我碩一剛進入實驗室時在實驗上所給予的幫助。

感謝林伯聰、王兆圻、王詩雯、孫羽澄學長姐對實驗上的教學與幫助及修課經驗的分享。感謝陳奕甫、黃詠隆、連安劭，一起在課業與實驗上的互相幫忙，也因為有你們，使實驗室生活總是充滿歡樂。感謝蔡林宗、許耀文、Va Thanh Tra，因為有你們的加入，幫我們分擔了不少實驗室的雜務，使我們可以專心於研究工作上。感謝賴佑仁學長在我論文撰寫時的相互討論，及幫忙解決在論文格式編輯上所碰到的問題。感謝所有曾經幫助過我的人，謝謝你們。

感謝論文口試委員：仲崇厚老師、林俊源老師與陳正中老師對這份論文的指導並提供寶貴的意見。

最後，感謝我的家人在這兩年來的支持與包容。因為有你們的鼓勵，才能使我有勇氣面對一切；因為有你們的付出，才能使我無後顧之憂的向前邁進。

目錄

中文摘要	i
英文摘要	ii
誌謝	iv
目錄	v
表目錄	vi
圖目錄	vii
一、	緒論.....	1
二、	理論.....	3
2-1	近藤效應.....	3
2-2	穿隧機制中近藤效應.....	5
2-2-1	弱耦合區域.....	7
2-2-2	強耦合區域.....	9
2-3	二通道近藤效應.....	10
2-4	二雜質近藤效應.....	13
三、	實驗方法.....	17
3-1	樣品製作.....	17
3-1-1	熱蒸鍍.....	17
3-1-2	成長氧化層.....	18
3-1-3	樣品製程條件及樣品資訊.....	18
3-2	低溫系統.....	22
3-2-1	^4He cryostat (Cryo).....	22
3-2-2	^3He refrigerator	25
3-3	量測電路.....	28
四、	結果與討論.....	33
4-1	超導能隙.....	33
4-2	微分電導對溫度與偏壓的關係.....	35
4-2-1	零偏壓微分電導 $G(0,T)$ 對溫度的關係	35
4-2-2	有限偏壓微分電導 $G(V,T)$ 對溫度與偏壓的關係	38
4-3	對稱項微分電導 $G_{\text{even}}(V,T)$ 行為之分析	48
4-3-1	高溫區域之 $G_{\text{even}}(V,T)$ - Appelbaum 理論分析.....	48
4-3-2	中溫區域之 $G_{\text{even}}(V,T)$ - 2CK(NFL) scaling 分析	51
4-3-3	低溫區域數據之討論.....	60
4-4	外加磁場下的對稱項微分電導 $G_{\text{even}}(V,T,B)$ 行為之分析	64
4-5	討論.....	68
五、	結論.....	79
六、	附錄.....	80
參考文獻	89

表目錄

表 3-1	穿隧接點電阻與氧化時間.....	19
表 4-1	$Al/AIO_x/Y$ 接點樣品資訊	35
表 4-2	穿隧接點樣品在不同溫區 $G(0,T)$ 對溫度的依存關係	38
表 4-3	背景電導參數 ($G_{BG,C}, a_1, a_2$) 的擬合結果.....	44
表 4-4	由近藤峰的 $FWHM$ 所估計的 T_K 值.....	48
表 4-5	$f_{2CK}(T) \propto \sqrt{T}$ 的溫度區間與由擬合結果得到參數 b_1 的值.....	60
表 4-6	$T \sim 0.25$ K 接點樣品的 g 與 $\delta(0)$	68



圖目錄

圖 1-1	Al/AIO _x /Sc 穿隧接點微分電導數據	2
圖 2-1	一般金屬電阻率隨溫度的關係	4
圖 2-2	Au 樣品中電阻隨溫度存在極小值的實驗數據	4
圖 2-3	近藤效應在稀磁合金中導電電子與雜質自旋交互作用的物理圖像	6
圖 2-4	模擬近藤經驗式(Kondo empirical form)的結果	6
圖 2-5	近藤效應效應在 Ta / Insulator / Al 穿隧接點的量測數據	8
圖 2-6	Appelbaum 所計算的穿隧接點模型示意圖	8
圖 2-7	2CK 模型示意圖	11
圖 2-8	2CK 模型不同參數條件下之 G-T 圖	11
圖 2-9	2CK 模型之相圖	12
圖 2-10	2IK 模型示意圖	15
圖 2-11	2IK 模型不同參數條件下之 G-T 圖	15
圖 2-12	2IK 模型之相圖	16
圖 3-1	熱蒸鍍系統示意圖	20
圖 3-2	穿隧接點製成時所用之金屬遮罩圖形	21
圖 3-3	輝光放電示意圖	21
圖 3-4	⁴ He 與 ³ He 蒸氣壓與溫度之關係	23
圖 3-5	⁴ He cryostat 構造圖	24
圖 3-6	⁴ He cryostat 工作示意圖	25
圖 3-7	³ He refrigerator 構造圖	29
圖 3-8	³ He refrigerator 上的樣品座示意圖	30
圖 3-9	使用 ³ He 冷卻工作示意圖	30
圖 3-10	超導磁鐵示意圖	30
圖 3-11	量測電路	31-32
圖 4-1	Al/AIO _x /Y 穿隧接點樣品的超導能隙圖	34
圖 4-2	小電阻穿隧接點的 G(0,T) - T 圖	36-37
圖 4-3	小電阻穿隧接點的 G(0,T) 對溫度的依存關係	39-42
圖 4-4	Al / AIO _x / Y 穿隧接點之原始 G - V 圖	43
圖 4-5	BDR 模型擬合數據	45
圖 4-6	G _{even} (V,T) 在不同溫度對偏壓的關係	46-47
圖 4-7	近藤峰之 FWHM 估計 T _K	49-50
圖 4-8	G _{even} (V,T) - h(V,T) 圖	52
圖 4-9	不同溫度的 G _{even,data} (V,T) 實驗數據與 G _{even,weak} (V,T) 模擬數據比較圖	53-55
圖 4-10	2CK scaling	57-58
圖 4-11	f _{2CK} (T) 對 √T 作圖	59
圖 4-12	中溫區域 1CK scaling 分析	61

圖 4-13	Kondo empirical form 對 $G(0,T)$ 擬合之結果	62
圖 4-14	低溫區域 1CK scaling 分析	63
圖 4-15	$G_{even}(V,0.25K,B)-V$ 圖	65
圖 4-16	$\delta(B)$ 對 B 的關係圖	66
圖 4-17	不同磁場下之 $G(0,T)-T$ 圖	67
圖 4-18	小電阻接點樣品各溫區的物理機制整理	70
圖 4-19	小電阻接點樣品在相圖上座落的位置	71
圖 4-20	Zeeman 分裂之實驗數據解釋之示意圖	75
圖 4-21	大電阻穿隧接點樣品(樣品編號 D、E)之微分電導的行為	76
圖 4-22	外加磁場環境下大電阻穿隧接點樣品(樣品編號 D、E)樣品之微分電導的行為	77
圖 4-23	穿隧接點氧化層厚度與雜質間距離對近藤效應的影響示意圖	78
圖 6-1	反對稱項微分電導 $G_{odd}(V,T)$ 之數據	81
圖 6-2	Al/AIO _x /Al 穿隧接點樣品之微分電導數據	82
圖 6-3	樣品編號 D、E 之 $G(V,T)-\sqrt{V}$ 圖	83
圖 6-4	超導能隙示意圖	84
圖 6-5	雜質間不同耦合類型其微分電導對磁場變化的行為	85
圖 6-6	雜質間的距離與 RKKY 交互作用類型的關係	86
圖 6-7	一般方型位壘穿隧電流之理論計算	87
圖 6-8	BDR 模型	88



一、緒論

近藤效應，一個研究關於導電電子與雜質自旋反鐵磁耦合的多體物理(many body physics)問題，已經充分的被人們了解。J. Kondo 在 1964 年計算 s-d 交換模型至 J^3 項(J 為反鐵磁耦合強度)得到在此交互作用下電阻對溫度的修正($R \propto -\log T$)[1]，其解釋了在稀磁合金中電阻對溫度出現極小值的現象。當溫度遠低於 T_K ，雜質自旋會被導電電子完全屏蔽(fully screened)形成單重態(singlet state)，導致其反映出費米液體(Fermi liquid)的行為($R \propto -T^2$) [2]。

不同於上述原始的近藤效應，最近 2、30 年理論與實驗關注於奇特近藤效應(Exotic Kondo effect)，例如：

1. 二通道近藤效應(Two-channel Kondo effect)[3, 4]，考慮一個自旋 1/2 的雜質各別地對兩個獨立的電子庫反鐵磁耦合(耦合強度分別為 J_1 、 J_2)(或是因二能級系統(Two level system)導致的二通道近藤效應)。
2. 二雜質近藤模型(Two-impurity Kondo model)中[5-8]，考慮兩個雜質對電子庫反鐵磁耦合且同時雜質間互相反鐵磁耦合，導致近藤效應(特徵能量 T_K)與雜質間反鐵磁耦合(特徵能量 K)的競爭。

在這些情況下，其會因兩種耦合的競爭而存在兩種不同相(phase)的基態，在 $T=0$ 時改變相對耦合強度可導致發生量子相變，因此其基態對相對耦合強度存在一 quantum critical point(對兩模型分別為 $J_1 = J_2$ 、 $(K/T_K)_C \approx 2.2$)，在 quantum critical point 上會顯露出特別的非費米液體(non-Fermi liquid)的行為。最近的實驗發展已經在 metal point contact 中觀察到由二能級系統所導致的二通道近藤效應[9]。而在半導體材料中，由一個人造自旋 1/2 的量子點對兩個獨立的電子庫耦合成功的實現與完全驗證二通道近藤效應之物理[10]。另外，在一個兩個自旋 1/2 的量子點對電子庫耦合，且經由調控量子點—量子點穿隧所造成的等效反鐵磁耦合的系統中，成功實現二雜質近藤模型中近藤效應與雜質間反鐵磁耦合的競爭，經由調控雜質間反鐵磁耦合強度觀察到在系統中發生量子相變的現象[11, 12]。

研究動機

本實驗室葉勝玄學長在 Al/AIO_x/Sc 的穿隧接點中，因在製作接點的過程可能使少量的 Sc 原子(3d¹)座落或輕微擴散入 AIO_x/Sc 的介面，導致其在微分電導的行為上觀察到近藤效應，進一步的分析結果，在中溫區域，穿隧接點之 $G(0,T) \propto -\sqrt{T}$ 且 $G(V,T)$ 遵守二通道近藤效應的 scaling law(圖 1-1)，反映出一非費米液體的行為[13]。在低溫， $G(0,T) \propto -T^2$ 飽和[23]。另外，本實驗室洪舜治學長在 Al/AIO_x/Y 的穿隧接點中(Y 原子(4d¹))也觀察到近藤效應，但與之前不同的是，在低溫其 $G(0,T)$ 隨溫度降低而下降[34]，其 $G(0,T)$ 呈現一非單調行為。因此，我們對 Al/AIO_x/Y 做更深入的實驗量測與分析期望對其中的交互作用機制有更進一步的了解。

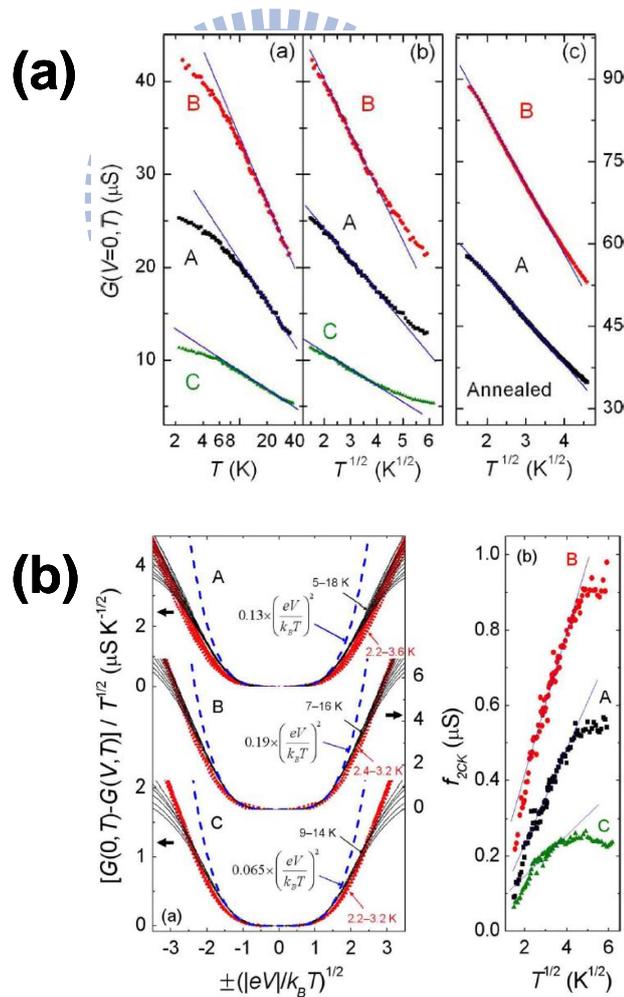


圖 1-1 Al/AIO_x/Sc 穿隧接點微分電導數據[13]。(a) $G(0,T)-T$ ，(b) 2CK scaling。

二、 理論

2-1 近藤效應 (Kondo effect)

一般金屬在高溫時導電電子傳導機制主要是受電子與晶格震盪所產生的聲子(Phonon)散射所支配，因此電阻會隨著溫度降低而減小，其行為可以用 Bloch-Gruneisen 理論的式子來描述，最後在低溫電阻會飽和至一有限值，稱為殘餘電阻，來源為電子與 random potential 散射，其對電阻的貢獻與溫度無關[14]。最後電阻的結果為兩個貢獻疊加(圖 2-1)。但若金屬中含有微量的磁性雜質(或稱為稀磁合金)，如 Cu、Ag、Au 等金屬中含有微量的 Cr、Fe、Mn 等雜質，在實驗觀察中，在高溫電阻的行為與前述類似，但在低溫其電阻會發生反常現象：電阻會隨著溫度下降而增加，造成電阻對溫度的關係會出現一個極小值，如圖 2-2。此即為近藤效應。

J. Kondo 在 1964 年提出[1]，使用二階波恩近似(the second Born approximation)計算 s-d 交換模型(s-d exchange model)，其結果可以解釋稀磁合金中電阻極小值的現象。在稀磁合金中，磁性雜質可以提供侷域自旋(localized spin)，且因為雜質濃度很低，所以每個侷域自旋可視為是孤立的，意即兩個自旋間沒有交互作用。Kondo 考慮導電電子與侷域自旋存在反鐵磁(antiferromagnetic)交互作用的系統。此系統的 Hamiltonian 可表示為

$$H = H_0 + H' , \quad (2.1)$$

式(2.1)的第一項為非微擾(unperturbative)項，為導電電子的能量，表示為

$$H_0 = \sum_{k,\sigma} \varepsilon_k c_{k\sigma}^+ c_{k\sigma} , \quad (2.2)$$

其中 ε_k 為一個具有動量 k 的導電電子具有的能量， $c_{k\sigma}$ 與 $c_{k\sigma}^+$ 分別代表毀滅(annihilation operator)與創造算符(creation operator)， σ 代表 z 軸的自旋方向。式(2.1)的第二項為微擾(perturbative)項，為導電電子與侷域自旋的交互作用，表示為

$$H' = (J/N) \sum_{nkk'} \exp \{i(k-k') \cdot R_n\} \times \{ (c_{k'+}^+ c_{k+} - c_{k'-}^+ c_{k-}) S_{nz} + c_{k'+}^+ c_{k-} S_{n-} + c_{k'-}^+ c_{k+} S_{n+} \} , \quad (2.3)$$

其中 J 為導電電子與侷域自旋耦合強度，定義 $J > 0$ 為反鐵磁性。 R_n 表示第 n 個自旋雜質的位置向量，其自旋算符表示為 S_n 。 $S_{n\pm}$ 定義為 $S_{nx} \pm iS_{ny}$ 。 N 為晶格原子總數。對其

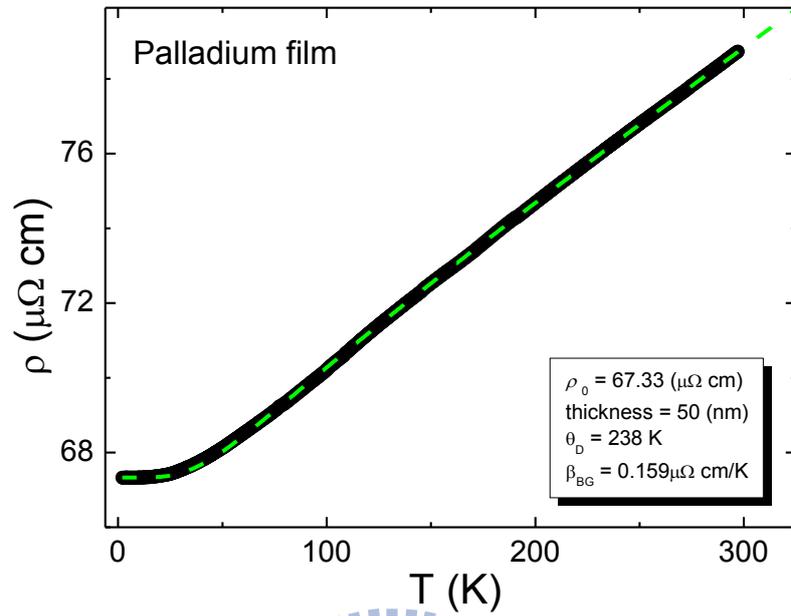


圖 2-1 一般金屬電阻率隨溫度的關係。圖中粗實線為樣品 *Pd* 膜的實驗數據，細虛線為 Bloch-Grüneisen 理論[14]的擬合線。

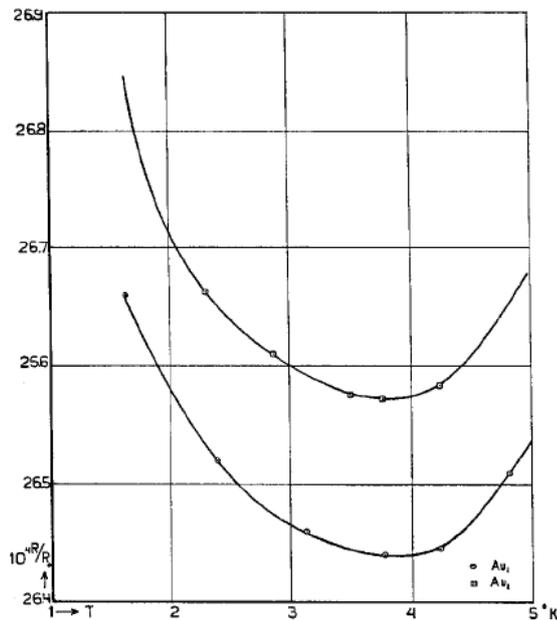


圖 2-2 Au 樣品中電阻隨溫度存在極小值的實驗數據。[3]

作二階波恩近似得到其散射率，發現導電電子在散射雜質自旋的前後其自旋會反轉，造成電阻隨溫度降低對數上升，結果表示為

$$R_{sd} = R_0 \left\{ 1 - J\rho(\varepsilon_F) \log\left(\frac{T}{D}\right) \right\}, \quad (2.4)$$

其中 $R_0 \approx cJ^2$ 為與溫度無關的項， $\rho(\varepsilon_F)$ 為態密度， D 導帶(conduction band)寬度。由式(2.4)明顯的得知，電阻與溫度有 $-\log T$ 的依存關係，結合在高溫時其他物理機制對電阻的貢獻，可解釋在稀磁合金中電阻隨溫度變化存在極小值的現象，如圖 2-2。但在 $T \rightarrow 0$ 的極限下， $\log T$ 項會發散，原因是因為其取有限微擾項的近似。所以我們知道當溫度低於某一特徵溫度後，其行為會偏離式(2.4)。此特徵溫度即為近藤溫度，定義為

$$T_K \equiv D \exp\left(\frac{-1}{J\rho}\right). \quad (2.5)$$

電阻的行為可由(2.4)描述的區域($T > T_K$)稱為弱耦合區域(Weak coupling regime; WCR)。

在溫度低於 T_K 之後[2]，雜質自旋與導電電子的等效耦合強度會由弱耦合過渡至強耦合 $J \rightarrow \infty$ ，這時雜質自旋會被導電電子完全屏蔽形成單重態(singlet) $S=0$ (圖 2-3)，即等效系統中不再存在未抑制磁矩，因此其可被費米液體(Fermi liquid; FL)理論所描述，結果導致電阻對溫度的關係為 $R \propto (T/T_K)^2$ (圖 2-4)。

經由數值重整化群(numerical renormalization group; NRG)的計算結果可近似得到一個近藤經驗式(Kondo empirical form)來描述近藤效應從弱耦合至強耦合區域對電阻的修正[15, 16]

$$R(T) = R_0 \left(\frac{T_K'^2}{T^2 + T_K'^2} \right)^s, \quad (2.6)$$

其中 $T_K' = T_K / (2^{1/s} - 1)^{1/2}$ ，對自旋 $S = 1/2$ 其 $s = 0.21$ 。其電阻行為模擬如圖 2-4。

2-2 穿隧機制中的近藤效應

1964 年 Wyatt[17]在量測 Ta / Insulator / Al 穿隧接點電導的實驗中觀察到，在低溫下其零偏壓電導 $G(0, T)$ 會隨著溫度降低而呈對數上升，且量測其非平衡電導 $G(V, T)$ 發現

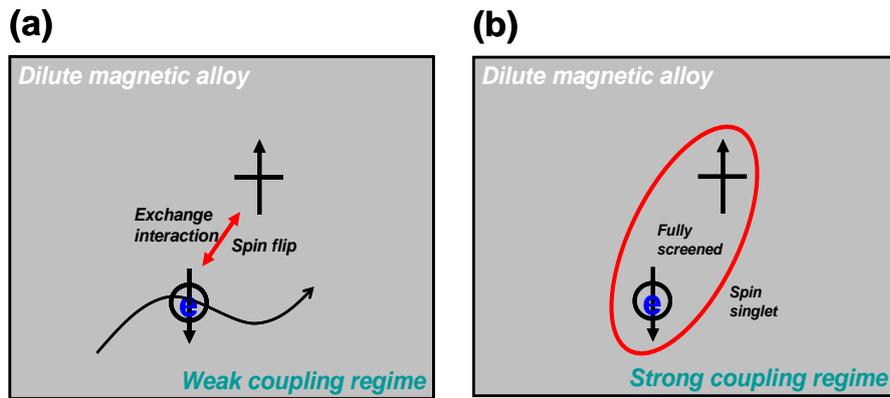


圖 2-3 近藤效應在稀磁合金中導電電子與雜質自旋交互作用的物理圖像[1, 2]。(a) 弱耦合區域(weak coupling regime; WCR)。(b) 強耦合區域(strong coupling regime; SCR)。

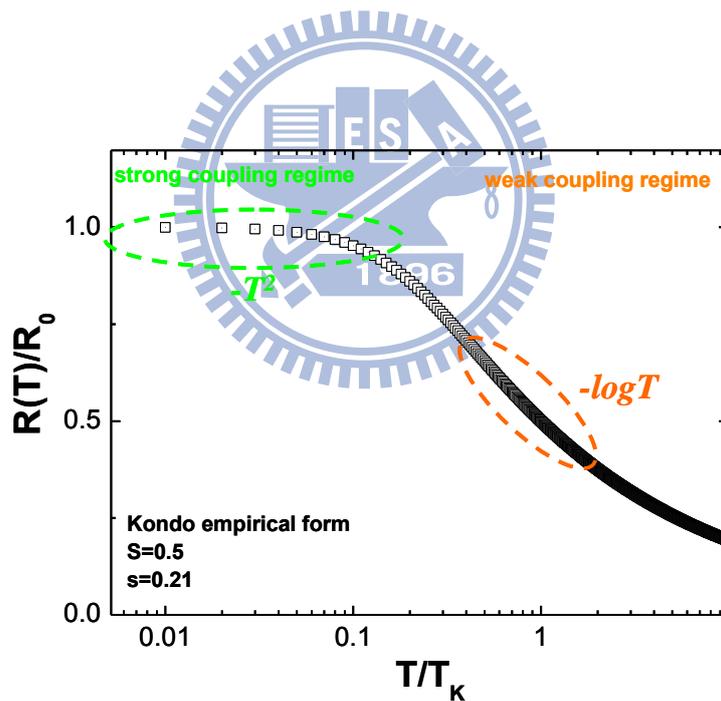


圖 2-4 模擬近藤經驗式(Kondo empirical form)[15, 16]的結果。可以根據電子不同的傳導機制置換 y 軸為電導 G 或電阻 R 。由圖中可以看出其電導在弱耦合區域為 $-\log T$ 上升，符合 Kondo 的理論計算結果，在強耦合區域為 $-T^2$ 的趨勢飽和，符合費米液體理論的預測。

在零偏壓附近 $G(V, T)$ 隨著偏壓降低而上升，在零偏壓存在一峰(peak)，且隨溫度下降峰值愈高，圖 2-5，當時 Wyatt 的解釋為在接點中過渡金屬那一側電極的能態密度發生反常變化造成此現象。Anderson 與 Appelbaum[18]則解釋此實驗觀察到的現象是由於磁性雜質與穿隧電子交互作用所造成，即對應至近藤效應。

2-2-1 弱耦合區域 (Weak coupling regime; WCR)

在 1966 年 Appelbaum[18, 19]計算在穿隧機制下導電電子與磁性雜質對電導的修正。他考慮一個一般 A(transition metal)/oxide A(insulator)/B(normal metal)的穿隧接點，接點兩側的金屬都保持正常態(即非超導態)，在氧化層內或介面有磁性雜質形成侷域順磁態(localized paramagnetic state)，如圖 2-6。他考慮經由與這些侷域態做交換散射(exchange scattering)所造成穿隧電流的模型(s-d exchange model)，計算電導與溫度、偏壓、磁場的關係。其 Hamiltonian 可表示為

$$H = \sum_i \frac{p_i^2}{2m} + \sum_i V(x_i) + \frac{1}{2} \sum_{i \neq j} W(x_i - x_j), \quad (2.7)$$

用二階量子化形式(second quantized form)表示可寫為

$$H = H_0 + H_1, \quad (2.8)$$

$$H_0 = \int \psi^*(x) \left(\frac{p^2}{2m} + V(x) \right) \psi(x) d^3x, \quad (2.9)$$

$$H_1 = \frac{1}{2} \int \psi^*(x) \psi^*(x') W(x - x') \psi(x') \psi(x) d^3x d^3x', \quad (2.10)$$

其中 $\psi(x) = \sum_i a_i \psi_i^a(x) + \sum_i b_i \psi_i^b(x)$

$$\psi^*(x) = \sum_i a_i^* \psi_i^{a*}(x) + \sum_i b_i^* \psi_i^{b*}(x),$$

其中 ψ_i^a 表示 region a(圖 2-6)態的完全集(complete set of state)， ψ_i^b 表示 region b 態的完全集。將上式代入(2.8)運算，可建構出在此系統，外加磁場 H ，外加偏壓 V 在 A 側(圖 2-6)的 Hamiltonian 可表示為

$$H = H_0 + H', \quad (2.11)$$

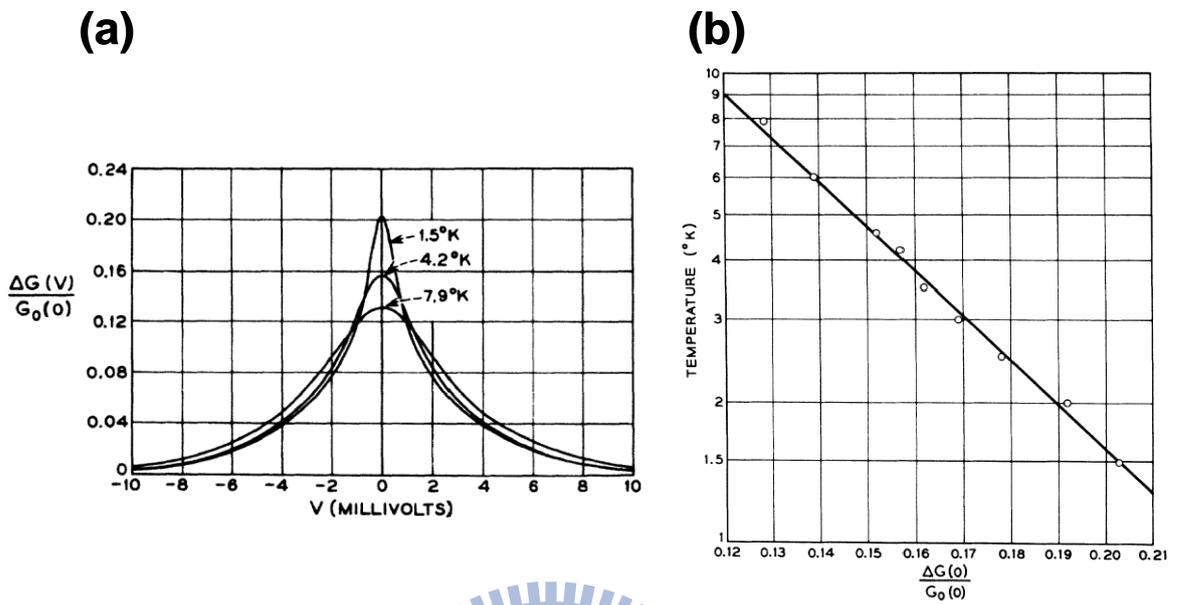


圖 2-5 近藤效應效應在 Ta / Insulator / Al 穿隧接點的量測數據。(a) $G(V, T)$ 在不同 T 對 V 的行為。(b) $G(0, T)$ 對 T 的行為。[17]

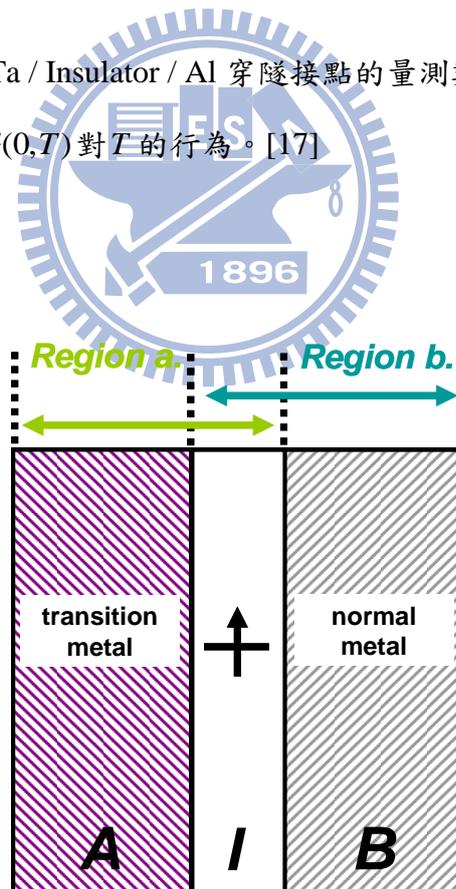


圖 2-6 Appelbaum 所計算的穿隧接點模型示意圖。[19]

$$H_0 = \sum_{k,\sigma} \tilde{\varepsilon}_{k\sigma}^a a_{k\sigma}^* a_{k\sigma} + \sum_{k,\sigma} \tilde{\varepsilon}_{k\sigma}^b b_{k\sigma}^* b_{k\sigma} + g|\mu_B|S \cdot H, \quad (2.12)$$

$$H' = H^T + H^I, \quad (2.13)$$

$$H^T = T_{J_a} \sum_{k,k'} S_z [(a_{k\uparrow}^* b_{k'\uparrow} - a_{k\downarrow}^* b_{k'\downarrow}) + (b_{k'\uparrow}^* a_{k\uparrow} - b_{k'\downarrow}^* a_{k\downarrow})] + T_{J_a} \sum_{k,k'} S^+ (a_{k\downarrow}^* b_{k'\uparrow} - b_{k\downarrow}^* a_{k'\downarrow}) \\ + T_{J_a} \sum_{k,k'} S^- (a_{k\uparrow}^* b_{k'\downarrow} + b_{k'\uparrow}^* a_{k\downarrow}) + T \sum_{k,k',\sigma} (a_{k\sigma}^* b_{k'\sigma} + b_{k'\sigma}^* a_{k\sigma}) + T_a \sum_{k,k',\sigma} (a_{k\sigma}^* b_{k'\sigma} + b_{k'\sigma}^* a_{k\sigma}), \quad (2.14)$$

$$H^I = J_a \sum_{k,k'} \{S_z (a_{k\uparrow}^* a_{k'\uparrow} - a_{k\downarrow}^* a_{k'\downarrow}) + S^+ a_{k\uparrow}^* a_{k'\uparrow} + S^- a_{k\downarrow}^* a_{k'\downarrow}\}, \quad (2.15)$$

其中 H_0 為非微擾項， H' 為微擾項。Appelbaum 使用與 Kondo 相似的計算方法，最後得到穿隧電導對溫度與偏壓的關係為[18-20]

$$G_{weak}(V,T) = A + B \int_{-\infty}^{\infty} \int_{-E_0}^{E_0} \frac{\tanh(\frac{1}{2}\beta\varepsilon')}{\omega - \varepsilon'} d\varepsilon' \times \frac{d}{d\omega} f(\omega - eV) d\omega \quad \text{for } H = 0 \\ \approx A - B \times \ln \left(\frac{[(eV)^2 + (nk_B T)^2]^{1/2}}{E_0} \right) \quad \text{where } n = 2, \quad (2.16)$$

其中 $A = \frac{4\pi e^2}{\hbar} \rho^a(\varepsilon_F) \rho^b(\varepsilon_F) N_a (T_a^2 + S(S+1)T_{J_a}^2)$ ， $B = \frac{16\pi e^2}{\hbar} \rho^a(\varepsilon_F) \rho^b(\varepsilon_F) S(S+1) N_a T_{J_a}^2 J_a$ ， $\rho^{a,b}(\varepsilon_F)$ 為兩側電極的態密度， N_a 為磁性雜質個數， J_a 為反彈電子的交換耦合常數， T_{J_a} 為穿透電子的交換耦合常數， T_a 為彈性穿隧係數(為非交換項)。 $\beta = 1/(k_B T)$ ， $f(x)$ 為費米分佈函數。由式(2.16)的近似項可知其穿隧電導對偏壓為一偶函數。

由式(2.16)可以知道在弱耦合區域近藤效應導致 $G(V,T)$ 以 $-\log|V|$ 及 $-\log T$ 上升。

2-2-2 強耦合區域 (Strong coupling regime; SCR)

前面已敘述過，當溫度低於 T_K ，雜質自旋與導電電子間等效耦合強度會由弱耦合過渡至強耦合，雜質自旋會被導電電子完全屏蔽形成單重態，系統中不再存在未抑制磁矩，使其可對應至費米液體理論，導致 $G(V,T)$ 以 $-V^2$ 與 $-T^2$ 趨近飽和。在文獻中[10, 21, 22]指出其 $G(V,T)$ 可描述為

$$G(V,T) \approx G(0,0) \left\{ \left[1 - c_T \left(\frac{T}{T_K} \right)^2 \right] - c_T \left[\alpha - c_T \gamma \left(\frac{T}{T_K} \right)^2 \right] \times \left(\frac{eV}{k_B T_K} \right)^2 \right\} \quad \text{for } (V,T) \ll T_K, \quad (2.17)$$

其中 c_T 為一個與模型有關的係數， α 為 $T=0$ 的曲率(zero temperature curvature)， γ 為一個代表近藤峰隨溫度變寬的係數(temperature broadening of the Kondo peak)，由理論預測 α 與 γ 為普通常數。

上面所討論的近藤效應的模型中為考慮一個自旋 1/2 的雜質對一個獨立的電子庫反鐵磁耦合，在此種模型下的交互作用我們稱為一通道近藤效應(One channel Kondo effect; 1CK)。在模型中，偽域態的簡併數為 $2S = 1$ ，屏蔽通道數 $M = 1$ ， $M = 2S$ 為完全屏蔽(fully screened)的情況。在高溫弱耦合區域，導電電子與雜質自旋作交換散射，導致 $G(V,T)$ 對溫度及偏壓對數上升。當溫度低於 T_K ，導電電子與雜質自旋之間等效耦合強度由弱耦合過渡至強耦合，雜質自旋被導電電子完全屏蔽兩者形成單重態 $S=0$ ，可對應至費米液體理論描述 $G(V,T)$ 以 $-V^2$ 與 $-T^2$ 的趨勢飽和。

2-3 二通道近藤效應 (Two-channel Kondo effect; 2CK)

考慮在一種特別的情況(圖 2-7)：模型中有一個自旋 1/2 的雜質同時對兩個獨立的電子庫反鐵磁耦合。其 Hamiltonian 可表示為[10]

$$H = \sum_{k,\sigma,i} \varepsilon_{ki} c_{k\sigma}^+ c_{k\sigma} + \sum_{i=1,2} J_i S_i \cdot S_I, \quad (2.18)$$

$J_{i=1,2}$ 為雜質自旋對個別的電子庫反鐵磁耦合強度，引索標 $i=1,2$ 代表兩電子庫個別對應的屏蔽通道。討論兩種情況：當 $J_1 \neq J_2$ ，在低溫極限下，耦合較強的電子庫會先將雜質屏蔽形成單重態 $S=0$ ，另一個電子庫的導電電子等效上就看不到雜質自旋而不作用，因此系統回到先前討論之 1CK 的情況。當 $J_1 = J_2$ ，此時兩個獨立的電子庫會競爭的去屏蔽雜質自旋，在低溫極限下($T=0$ ， $J_1 = J_2$ 即為 2CK fixed point)，自旋 1/2 的雜質會有兩種獨立的導電電子各自提供 1/2 但方向與雜質自旋相反的自旋競爭地屏蔽它，造成過度屏蔽(overscreened; $S \neq 0$)的情況，此時其 $G(V,T)$ 不再符合費米液體理論($\propto T^2$ 、 V^2)的描述，由文獻[9]指出在此情況 $G(V,T)$ 可描述為

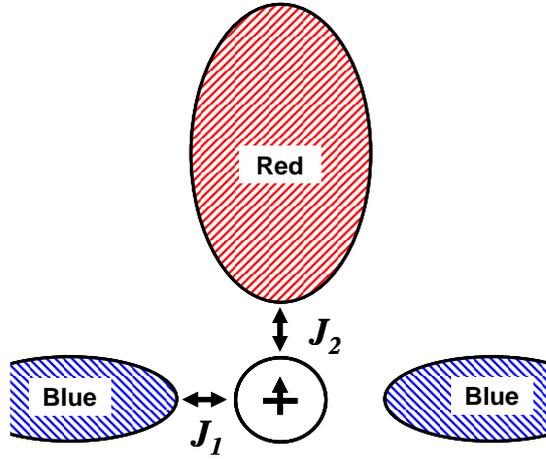


圖 2-7 2CK 模型示意圖。[4]

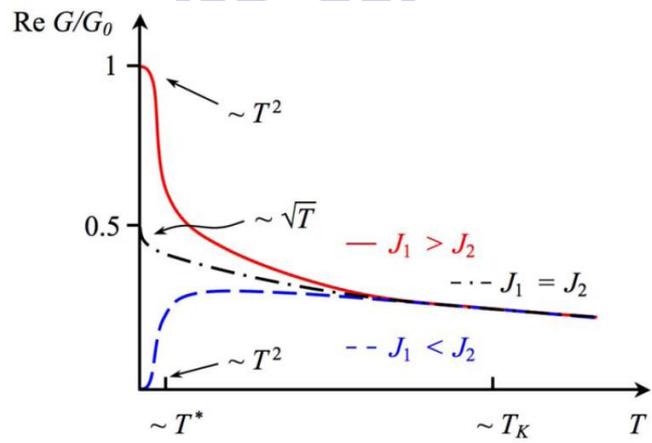
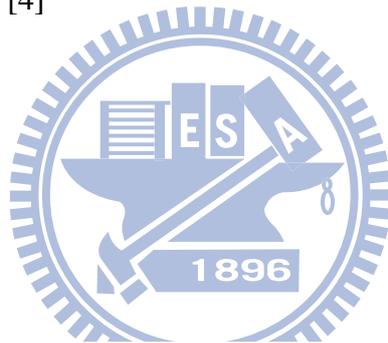


圖 2-8 2CK 模型不同參數條件下之 G-T 圖。[4]

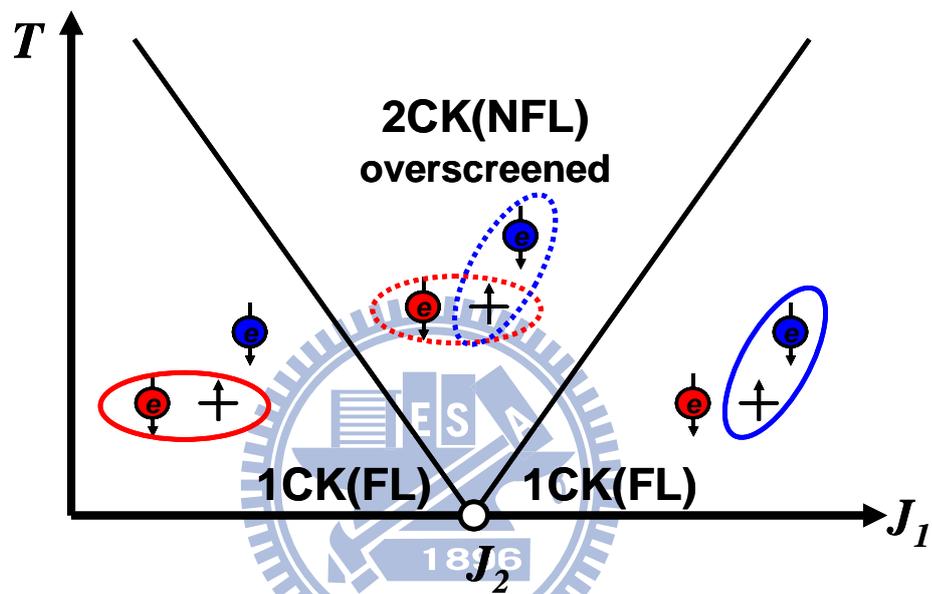


圖 2-9 2CK 模型之相圖[4]。考慮一自旋 1/2 的雜質對兩的獨立的電子庫反鐵磁耦合(藍電子庫與紅電子庫，對應的反鐵磁耦合分別為 J_1 與 J_2)，不同的相對耦合大小會對應到不同相的基態，當 $J_1 = J_2$ 時為過度屏蔽的情況。

$$G(V,T) = G(0,0) - P_2 T^{1/2} \Gamma\left(P_1 \frac{eV}{k_B T}\right), \quad (2.19)$$

其中 P_1 與 P_2 不是普適常數，其可能會與樣品的幾何條件有關，在我們的樣品可能對應雜質自旋與電極(電子庫)的距離。 $\Gamma(x)$ 為一普適 scaling 函數，其在極限下可近似為

$$\Gamma(x) \approx \begin{cases} 1+cx^2, & |x| \ll 1 \\ \frac{3}{\pi} \sqrt{|x|}, & |x| \gg 1 \end{cases}, \quad (2.20)$$

由式(2.19)與(2.20)可以得到平衡態微分電導對溫度的關係為 $G(0,T) \approx G(0,0) - P_2 \sqrt{T}$ 。我們可以得到一個 scaling form

$$\frac{G(0,T) - G(V,T)}{T^{1/2}} \approx P_2 \times \left[\Gamma\left(P_1 \frac{eV}{k_B T}\right) - 1 \right] \approx \begin{cases} (cP_1^2 P_2) \times \left(\frac{eV}{k_B T}\right)^2, & \frac{|eV|}{k_B T} \ll 1 \\ \frac{3}{\pi} P_2 \sqrt{P_1} \times \sqrt{\frac{|eV|}{k_B T}} - P_2, & \frac{|eV|}{k_B T} \gg 1 \end{cases}, \quad (2.21)$$

由(2.21)可知其 $G(V,T) \propto \sqrt{|V|} \sim \sqrt{T}$ ，偏離費米液體理論預測的行為，稱為非費米液體(non-Fermi liquid; NFL)。

一個自旋 1/2 的雜質分別以 J_1 與 J_2 對兩個獨立的電子庫反鐵磁耦合的模型稱為二通道近藤模型(Two-channel Kondo model; 2CK) (圖 2-7)。在模型中參數 $J_1 > J_2$ 或 $J_1 < J_2$ 都會回到 1CK 的情況，基態為完全屏蔽，其 $G(V,T) \propto V^2$ 、 T^2 符合費米液體的行為。當 $J_1 = J_2$ ，基態為過度屏蔽的情況而反映出非費米液體的行為，其 $G(0,T) \propto -\sqrt{T}$ (圖 2-8) 且 $G(V,T)$ 可用 2CK scaling form 來描述。2CK 模型的相圖之示意圖如圖 2-9。

2-4 二雜質近藤模型 (Two-impurity Kondo model; 2IK)

當考慮的系統中雜質間存在交互作用，這時就不再能把各雜質視為孤立的個體，而是需考慮雜質對電子庫耦合且雜質間相互耦合的整體效應。一個最簡單的情況為考慮系統中存在兩雜質，其各別對電子庫耦合且同時雜質間互相耦合的模型，這種模型稱為二雜質近藤模型(Two-impurity Kondo model; 2IK)，其 Hamiltonian 可描述為[5, 6]，

$$H = \sum_{k,\sigma} \varepsilon_k c_{k\sigma}^+ c_{k\sigma} + \sum_{i=1,2} J[s(r_i) \cdot S_i] + K_0 S_{I1} \cdot S_{I2}, \quad (2.22)$$

其中 S_i ($i=1,2$) 分別代表兩個自旋 1/2 的雜質在 r_i 的位置， $K_0 S_{I1} \cdot S_{I2}$ 代表兩雜質間的直接耦合。式(2.22)的第二項除了表示兩雜質對電子庫的近藤耦合外，另外其會導致 RKKY 交互作用使兩雜質間存在一間接耦合 K_{RKKY} 。因此系統中等效雜質間耦合為 $K = K_0 + K_{RKKY}$ 。若雜質間等效耦合為反鐵磁性($K > 0$)，此時近藤效應(特徵能量尺度 T_K)與雜質間反鐵磁耦合(特徵能量尺度 K)會產生一種競爭關係導致存在兩種可能的相(phase)之基態，在 $T=0$ 時經由兩效應競爭的相對強弱不同而發生量子相變，其存在一 quantum critical point 為 $(K/T_K)_C \approx 2.2$ 分離這兩相(圖 2-12)：當 $(K/T_K) < (K/T_K)_C$ ，在競爭中近藤效應較強，因此雜質自旋會被導電電子所屏蔽形成單重態，稱為近藤屏蔽相(Kondo screened phase)，反之，當 $(K/T_K) > (K/T_K)_C$ ，雜質反鐵磁耦合的效應強於近藤效應，因此雜質間傾向相互屏蔽形成單重態 $S=0$ ，導致抑制近藤效應發生，此稱為侷域自旋單重相(local spin singlet phase)。文獻中指出[7, 8]在 2IK 模型中的 quantum critical point 等同於 2CK 模型的 2CK fixed point，其都會顯露出非費米液體的行為，在 transport 性質方面其 $G(0,T) \propto -\sqrt{T}$ (圖 2-11)且 $G(V,T)$ 也會遵守與 2CK 一樣的 scaling law。2IK 模型的相圖之示意圖如圖 2-9。

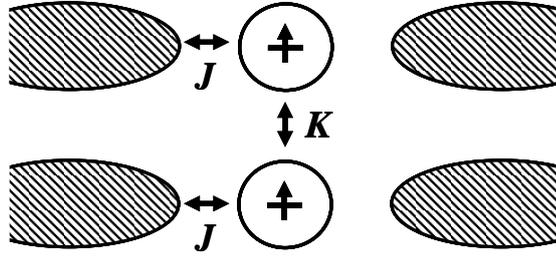


圖 2-10 2IK 模型示意圖。[8]

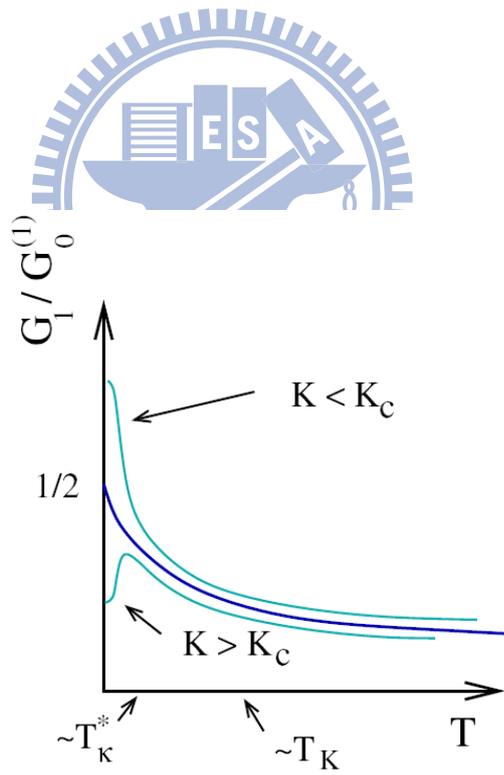


圖 2-11 2IK 模型不同參數條件下之 G-T 圖。[8]

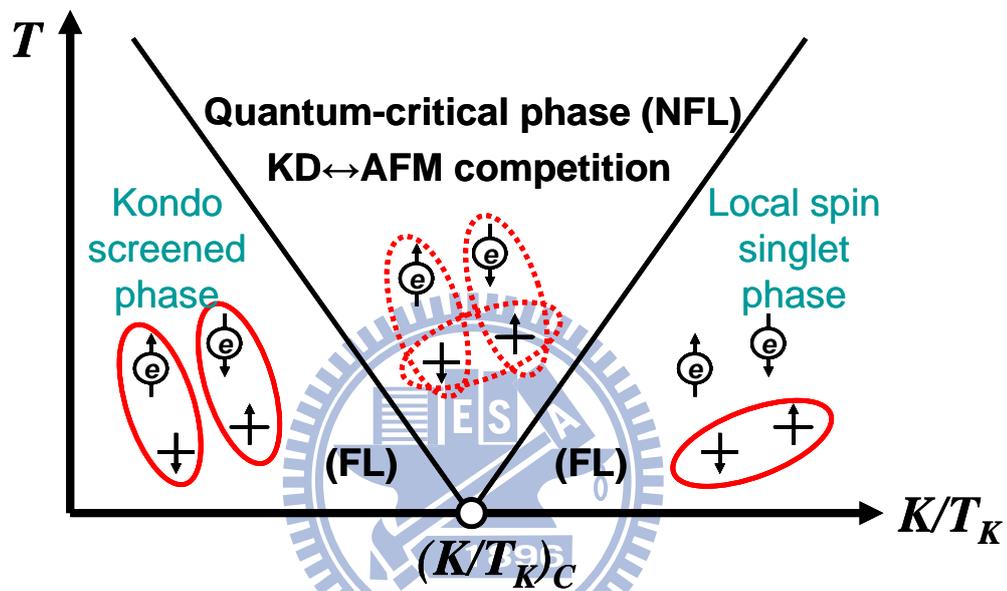


圖 2-12 2IK 模型之相圖[8]。圖中 KD 代表近藤效應，AFM 代表雜質間等效反鐵磁耦合。兩效應競爭的相對大小會對應到不同相的基態，其存在一 quantum critical point $(K/T_K)_C$ 分離此兩相。

三、 實驗方法

3-1 樣品製備

穿隧接點為一個金屬/絕緣/金屬的三層結構，在製備程序上分為三步驟：1.沉積第一層金屬層，2.成長絕緣層，3.沉積第三層金屬層。

在我們的樣品中，第一層金屬為鋁(Al)，使用熱蒸鍍的方法來製作，第二層絕緣層為氧化鋁(AlO_x)，我們使用氧氣輝光放電(glow discharge)的方式來成長，第三層金屬為鈮(Y)，我們也是用熱蒸鍍的方式來製作。

以下我們先就熱蒸鍍沉積及成長氧化層的原理及方法作介紹，在本節的最後我們將說明我們樣品的製程條件及樣品資訊。

3-1-1 熱蒸鍍

熱蒸鍍(thermal evaporation)為物理氣相沉積的一種，在薄膜製程中為一種常見的技術。其工作原理為在高真空的環境下，使電流流過鎢舟(boat)加熱欲蒸鍍的材料(蒸鍍源)，使之融化蒸發，而我們將基板放置於其上方適當的距離，使材料的蒸氣凝結在基板上，冷卻後就形成此材料的膜。

在蒸鍍機腔體內有一石英震盪器偵測膜厚。其原理為石英原始的震盪頻率為 6 MHz，當我們蒸鍍時蒸氣也會同時附著於石英片上，導致其震盪頻率改變，因此我們可以依據頻率的改變量並配合一些參數的設定而得到精準的膜厚及蒸鍍的速率。

熱蒸鍍工作流程如下：

1. 抽真空流程：抽真空的步驟有兩個目的。一是為了使腔體保持乾淨，利用抽氣系統將腔體內的水分子或有機分子抽掉，確保在蒸鍍過程不會和材料反應。二是降低氣體分子與材料蒸氣的碰撞機率，若腔體壓力太高，在蒸鍍過程殘餘氣體分子與材料的蒸氣發生碰撞的頻率增加，此會帶走蒸氣的動量，造成膜不平整及無序性增大。
2. 蒸鍍過程：對鎢舟通入電流使之加熱蒸鍍源。通入的電流越大，鎢舟就越熱，蒸

鍍的速率與蒸氣的動能就越大，所以我們可以用蒸鍍電流的大小或蒸鍍的速率來控制膜的無序性程度。在蒸鍍源與基板之間有一擋板(shutter)，在一開始擋板先遮住基板，等待至蒸鍍速率達要所要求且穩定時，再打開擋板開始進行蒸鍍，直到膜厚達到要求，立刻關掉擋板，阻止蒸氣繼續沉積在基板上。

3. 冷卻過程：在做完蒸鍍後，基板與腔體會處於較高溫的狀態，此時不宜立刻破真空或進行下一個動作，以防止樣品和其他物質發生反應。我們會等待 1 小時待其冷卻，再進行下一個動作。

另外，若想要使膜有特定的圖形而不是均勻的覆蓋整個基板，可以在放入腔體前先用金屬遮罩(metal mask)覆蓋基板或是在基板上作光微影的處理。

蒸鍍設備如圖 3-1。

3-1-2 成長氧化層

我們使用輝光放電(glow discharge)的技術來成長氧化層。先將腔體通入氧氣使之動態平衡在一固定壓力，在基板與線圈間加一高電壓使氧氣游離，此時一些帶有激發電子的氧離子就會往基板移動並與鋁反應成為氧化鋁，如圖示 3-3。

3-1-3 樣品製程條件及樣品資訊

我們使用康寧(Corning)玻璃作為基板，幾何尺寸為 9.6 mm×5.9 mm×0.5 mm，遮罩為金屬遮罩，圖形及說明見圖 3-2。

蒸鍍所使用的鋁材為昇美達公司所生產的鋁線(Al wire)，純度為 99.999 %。蒸鍍用的鈮材為 Johnson matthey catalog company 所生產的鈮片(Y chip)，純度為 99.9 %。蒸鍍所使用的載具為鎢舟(W boat)。

在蒸鍍時基板與蒸鍍源距離大約 15 cm。抽氣系統為機械幫浦匹配渦輪幫浦，在蒸鍍製程中腔體壓力保持在 10^{-6} torr。Al 膜製程蒸鍍速率約為 0.3-0.4 nm/sec，厚度為 20 nm。Y 膜製程蒸鍍速率約為 0.4-0.8 nm/sec(初始速率約為 0.4-0.6 nm/sec)，厚度為 60 nm。

在蒸鍍 Al 與 Y 膜之間需先成長一層 AlO_x 當作絕緣層，成長方式為輝光放電的技

術。工作時通入高純度氧氣使腔體壓力保持 0.1 torr 動態平衡，工作功率為 17 W，加在線圈與樣品座上的電壓大約為 500 V。Al/AlO_x/Y 穿隧接點樣品的氧化時間與室溫電阻如表 3-1。

表 3-1 穿隧接點電阻與氧化時間

樣品編號	氧化層氧化時間	接點面積	室溫接點電阻
	sec	mm ²	Ω
A	1800	0.5×0.8	170
B	1800	1.2×0.5	310
C	1800	1.2×0.5	490
D	3600	0.5×0.8	2300
E	3600	1.0×0.8	12700

討論:

一個好的穿隧接點的關鍵在於絕緣層，在成長絕緣層時，難免會有漏洞(pinhole)出現，這些漏洞會使兩邊金屬直接接觸，造成漏電流。若漏電流過大時，樣品的微分電導行為就不再是由穿隧機制所主導。減少絕緣層漏洞降低漏電流有以下辦法：1.縮小接點面積，2.絕緣層增厚，3.使用緻密材料製作絕緣層。在我們的情況，我們使用金屬遮罩，所以蒸鍍圖形的大小有一定的限制，所以接點面積就無法做的太小。而絕緣層厚度若是太厚，穿隧電流會過小，在實驗量測訊號解析會有困難。氧化鋁本質上是一種緻密的物質，且以我們的情況製作上方便，所以我們選用氧化鋁來做我們的絕緣層。

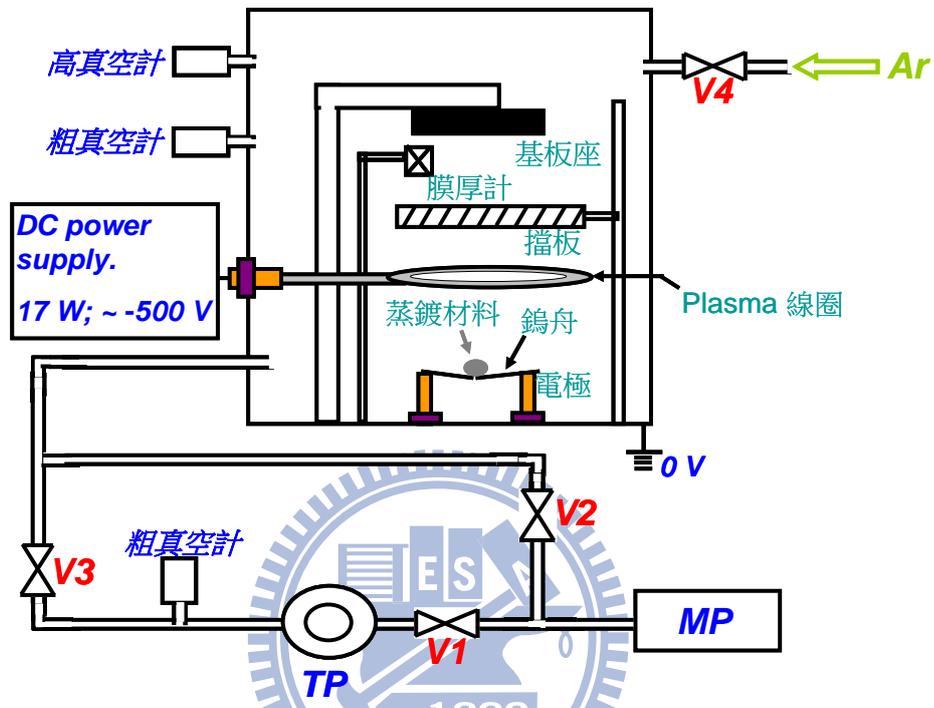


圖 3-1 熱蒸鍍系統示意圖。工作流程：1.封上腔門後，起動機械幫浦(MP)待其穩定，先開 V2 閥門使用 MP 粗抽腔體至 5×10^{-2} torr 以下。2.關 V2 開 V1，將渦輪幫浦 (TP) 管路抽至 5×10^{-2} torr 以下，啟動 TP，打開 V3，開始抽腔體。3.待至腔體壓力到達 3×10^{-6} torr 以下(以我們的熱蒸鍍系統之 MP、TP 的匹配，時間大概需要 4-5 小時)，進行蒸鍍及氧化過程。4.完成蒸鍍及氧化過程後，等待 1 小時使腔體與樣品冷卻。5.關掉 V3，關掉 TP，保持 MP 持續抽 TP 的空間與管路。此時因為腔體壓力很低，腔門是無法開啟的，若要開腔門取樣品則開 V4 導入氬氣使腔體回壓。6.TP 關閉兩小時後，則可關掉 V1，關掉 MP。工作完成。

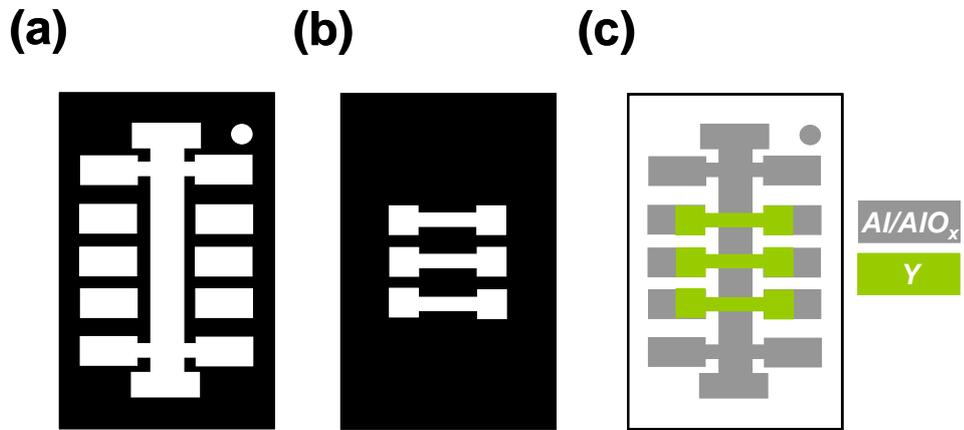


圖 3-2 穿隧接點製成時所用之金屬遮罩圖形。(a) 蒸鍍 Al 膜及成長 AlO_x 所以用之遮罩圖形。(b) 蒸鍍 Y 膜所使用之遮罩圖形。(c) 樣品完成後之示意圖。

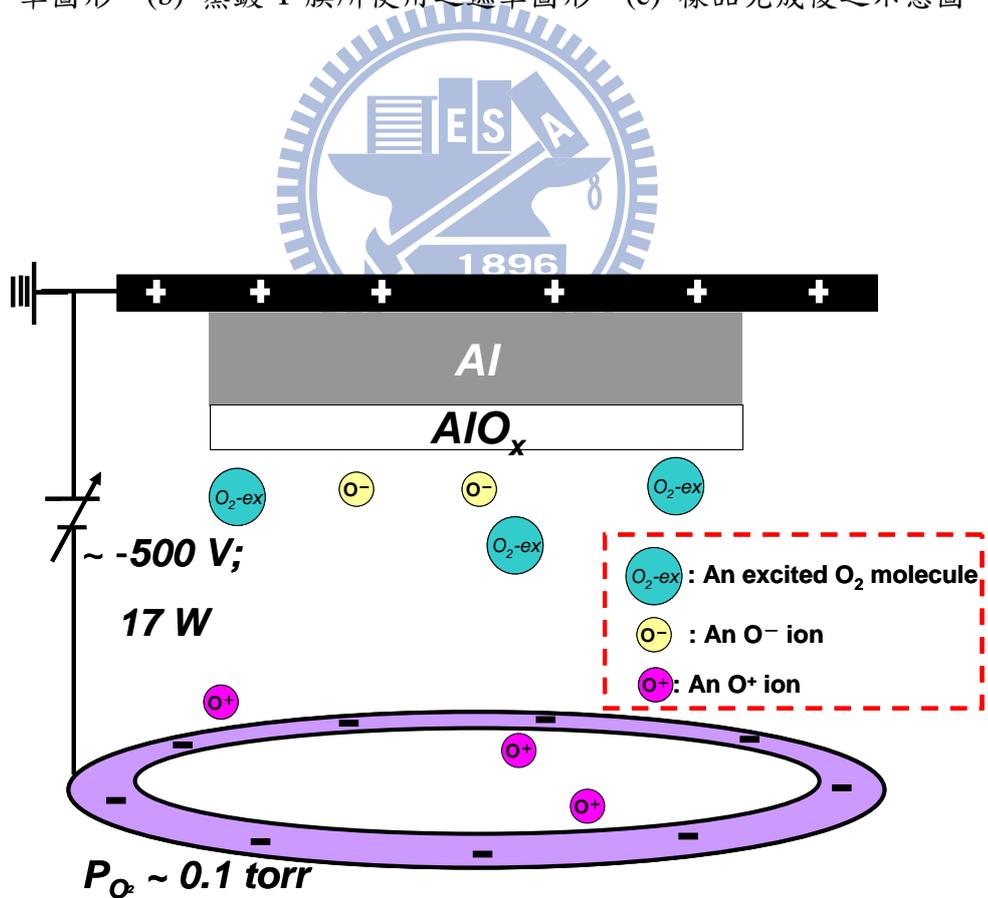


圖 3-3 輝光放電示意圖。[23]

3-2 低溫系統

本節我們將介紹量測需用到的低溫系統。我們的穿隧接點樣品量測溫度範圍為 60K - 0.25 K，外加磁場到 4 T。依據量測上的需求我們需要用到兩種低溫系統， ^4He cryostat 及 ^3He refrigerator。以下將依序就這兩種系統做介紹。

3-2-1 ^4He cryostat(cryo)

我們所以用的為 Cryo Industries 所製造之 ^4He cryostats(Model SVT-1572-SDI Insertable Storage Dewar Cryostat)。此系統可提供的溫度環境為 300-1.2 K。

3-2-1a 構造說明

構造示意如圖 3-5。Cryostat 主要為雙層結構，外層為真空夾層(insert insulating vacuum)，內層為樣品空間(sample space)。真空夾層的功用是防止熱由曝露在杜瓦瓶(Dewar flask)外的部分導入樣品空間。內層樣品空間為放至樣品的地方，樣品座由一根不銹鋼棒連接至上方的置入口。樣品空間連接了兩條管路，一個在上方可連接機械幫浦抽氣，一個在下方連接針閥，液氦可經由針閥流入樣品空間。Cryostat 內有兩顆溫度計(sensor)及兩顆加熱器(heater)，此部分會在稍後說明。

3-2-1b 降溫原理

在我們量測溫區的需求(60-2.2 K)，依溫度區間降溫方法可分為兩部分。1. 60- ~4.2 K。在此溫區內，降溫方法為利用機械幫浦使液氦流過針閥抽進樣品空間，因為此時樣品空間的溫度高於液氦(L ^4He)的沸點溫度(4.2 K, 1 bar)，所以瞬間蒸發成為 4.2K 的冷氦氣，而我們就利用這種 4.2 K 的冷氦氣來跟我們的樣品作熱交換，帶走樣品上面的熱使樣品冷卻至~4.2 K。2. ~4.2-1.2 K。在此溫區內，因為期望達到的溫度已經比液氦的沸點還要低，所以上述的方法無法達到冷卻的效果。在此溫區我們使用減壓降溫的方式來冷卻。我們知道液氦的沸點會與飽和蒸氣壓有關，壓力降低，沸點降低，如圖 3-4。在這時候因為樣品空間的溫度已經達到 4.2 K 或以下，所以液氦會被抽進樣品空間，我們將

針閥關小或全關，機械幫浦保持抽氣，使樣品空間的壓力降低，此時在樣品空間內的液氦所蒸發出來的冷氦氣其溫度就會低於 4.2 K，因此可冷卻我們的樣品使溫度降至 ≤ 1.2 K。工作示意如圖 3-6。

3-2-1c 溫度計與加熱器

^4He cryostat 搭配有兩顆溫度計(sensor)及兩顆加熱器(heater)。兩顆溫度計都為 silicon diode，工作範圍為 1.2-325 K，其中一顆又經過校正，校正溫度範圍為 1.4-325 K；兩顆溫度計一顆在靠近無氧銅樣品座附近，一顆在接近針閥管路與樣品空間的連接處。加熱器有兩種類型。一顆加熱器為 Ribbon，電阻為 60 Ω ，位於靠近無氧銅樣品座附近的位置；另一顆加熱器為 Cartridge，電阻為 50 Ω ，位置在接近針閥管路與樣品空間的連接處。溫度計及加熱器位置如圖示 3-5。

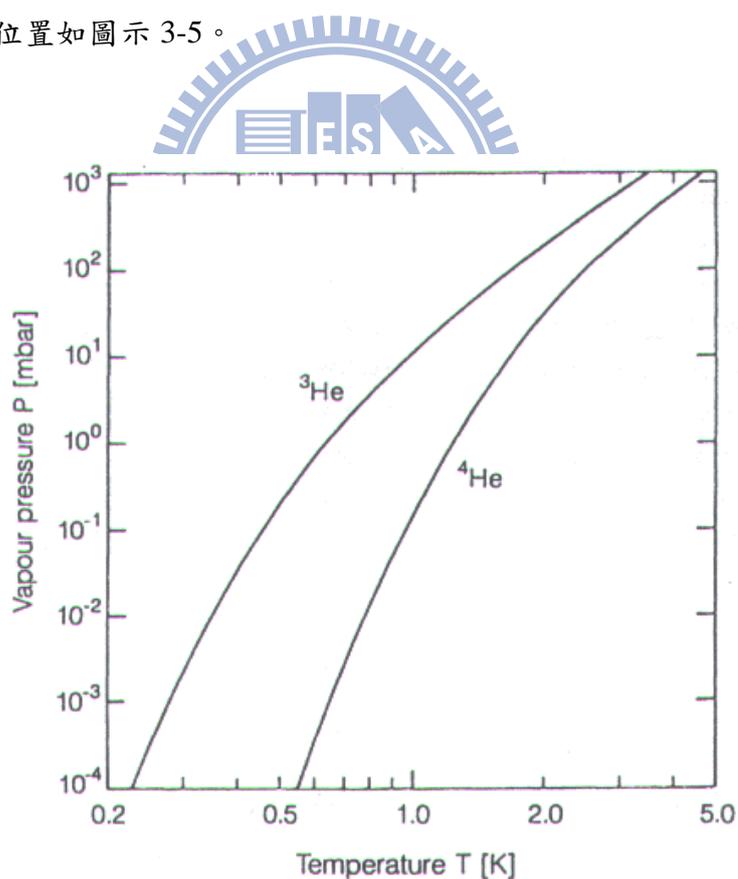


圖 3-4 ^4He 與 ^3He 蒸氣壓與溫度之關係。

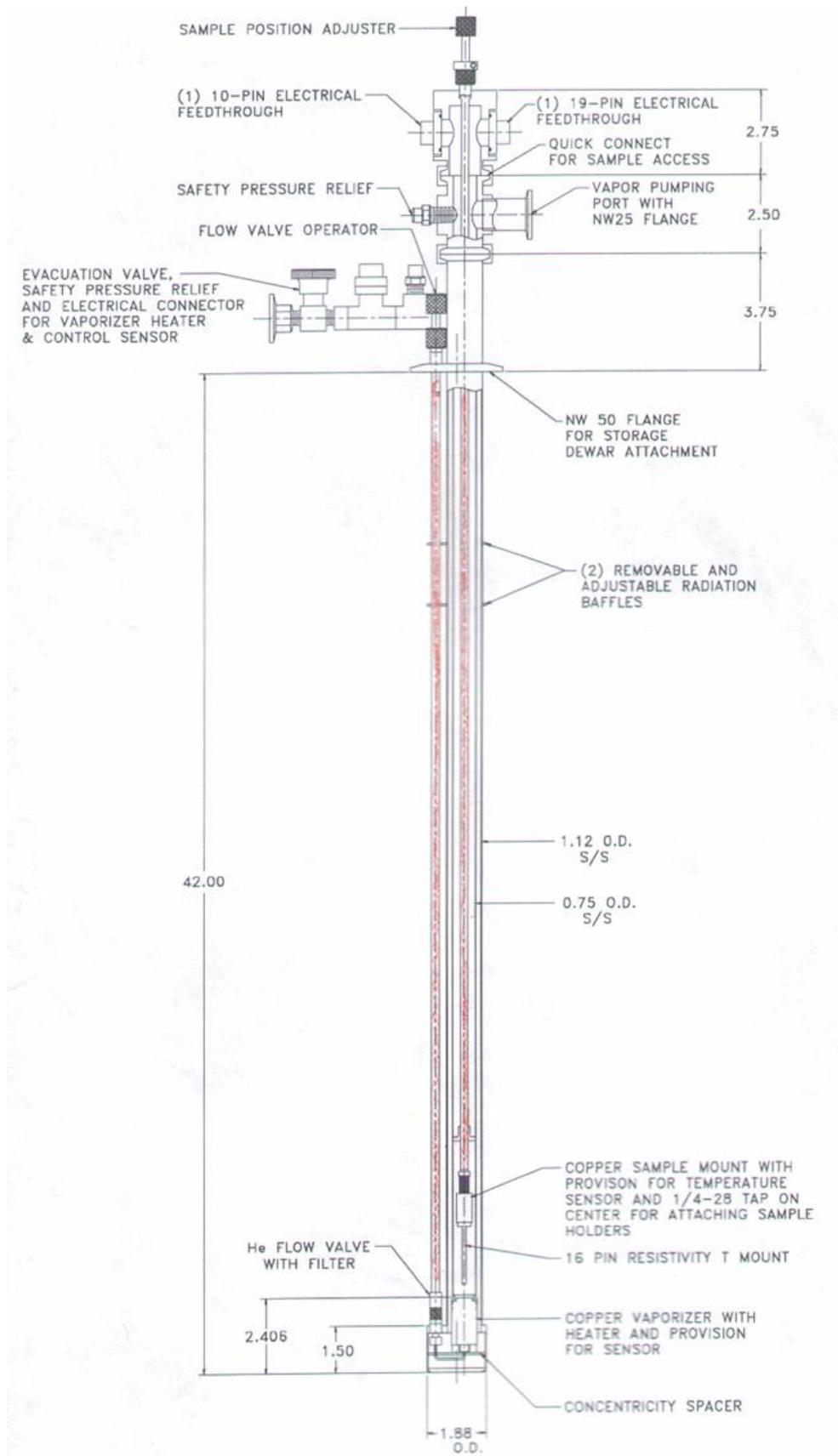


圖 3-5 ^4He cryostat 構造圖。

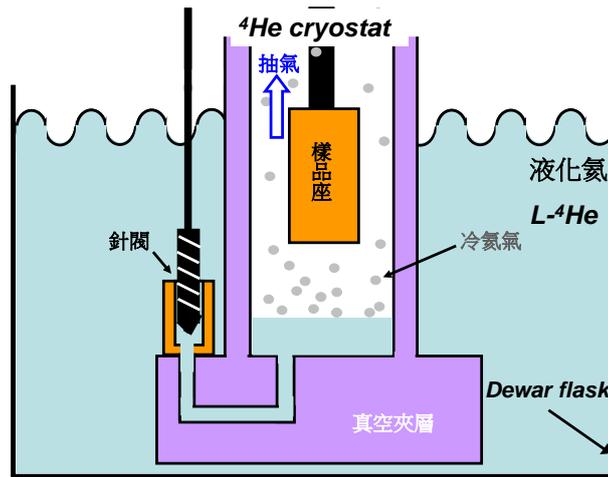


圖 3-6 ^4He cryostat 工作示意圖。

3-2-2 ^3He refrigerator

我們所使用的 ^3He refrigerator 為 Oxford 所製造之 ^3He refrigerator(HelioxVL)。此系統可掛載一 4T 超導磁鐵，提供量測時所需的外加磁場。此系統在超導磁鐵使用時建議工作溫度範圍約 70 K-base temperature(~ 0.25 K)。在實驗量測上，我們使用的溫度為 30 K-base temperature(~ 0.25 K)，外加磁場至 4 T。

3-2-2a 構造說明

^3He refrigerator 構造如圖 3-7 所示。主要可分為三個部分，第一部份為儀器最上方，我們稱為 A 段，包含有 ^3He dump 及其上方的針閥電動馬達、訊號線接頭、超導磁鐵電極、1K plate pumping line and valve 及 IVC pumping line and valve。第二部分在儀器的中間，我們稱為 B 段，外觀為一根中空的不鏽鋼管，其內部為連接第一段與第三段的訊號線。第三部分在儀器的最下方，我們稱為 C 段，此為一個腔體 IVC(inner vacuum chamber)，拆下 IVC 後就是核心部分，其中有 ^3He sorb、1K plate、 ^3He pot、樣品座、五顆溫度計及三顆加熱器。封上 IVC 後會有一個不銹鋼小管漏在外面，為 1K plate 管路，其作用是將液氦(L^4He)抽進 IVC 內的管路，管路內有一針閥，以 A 段的針閥電動馬達控制此針閥大小，管路會從 IVC 上方進入 IVC 內，繞過 ^3He sorb 及 1K plate，最後連接 A 段的 1K plate pumping line。超導磁鐵套在 IVC 的最下方，位置平行且正對著樣品座。

^3He 平時儲存在 ^3He dump，有一條管路接出通過 B 段到達 C 段， ^3He sorb 被包覆在其管路內，1K plate 連接包裹在其管路外側，最後連接到 ^3He pot 內形成封閉管路，此為 ^3He 密閉系統。

樣品座是本實驗室自行設計的，如圖 3-8 所示。樣品座材質為無氧銅，接在 ^3He pot 下端，因為銅的導熱性好，所以 ^3He pot 和樣品座很快可以達到熱平衡，所以我們可以將樣品座的溫度和 ^3He pot 視為相同。樣品可放在樣品座不同的位置上而改變外加平行或垂直磁場。

3-2-2b 降溫原理

在下低溫前我們會先將 IVC 內的壓力抽至 10 mtorr 以下，確保腔體內乾淨。之後放入少量的氮氣做交換氣體，使腔體壓力大約在 10 mtorr 左右。降溫方式依據溫區不同可分為三種：

1. 70–8K。在此溫區內降溫主要靠 IVC 內的交換氣體與外面的液氮(~4.2K)做熱交換。但因為我們放入的交換氣體壓力大約只有 10 mtorr 的氮氣，平衡溫度(指的是不抽 1K plate 管路時熱平衡的溫度)大約在 7-8 K，所以用此種方法降溫最低只能到約 8 K 左右。
2. 8–1.8 K。在此溫區要降溫就需要打開針閥將外面的液氮抽進 1K plate 管路。抽進來的液氮沿著管路冷卻 ^3He sorb、1K plate，1K plate 會沿著 ^3He 密閉系統的管路冷卻 ^3He pot。因為 1K plate 管路內有針閥和一些阻尼裝置，所以管路內的壓力會較低，此會達到減壓降溫的效果使溫度可以冷卻到~1.8 K。
3. 1.8 K – base temperature(~0.25 K)。在達到此溫， L^4He 或對其作減壓降溫都無法提供我們所需要的冷源，這時我們就需要 ^3He 做為我們的冷源。前面已敘述我們的 ^3He refrigerator 的 ^3He 是裝在一個密閉系統內，示意如圖 3-9。此密閉系統工作原理如下：當系統下低溫後，因為 A 段在室溫，C 段泡在液氮裡溫度較低，會有 cryo pumping 的效果，因此原本儲存在 A 段 ^3He dump 的 ^3He 氣體會往下方跑，但因為 sorb 此時也是處於低溫， ^3He 氣體會被 sorb 吸附而無法到達

^3He pot。我們加熱 sorb 到 30 K， ^3He pot 溫度低於 2.2 K(低於 ^3He 沸點)，使 ^3He 氣體可已通過 sorb，在 ^3He pot 冷凝成 L^3He (液 ^3He)，等待一段時間後(建議值為 30 分鐘)，關掉 sorb heater 使 sorb 溫度下降，sorb 會對 ^3He pot 抽氣，裡面的 L^3He 因減壓降溫的關係溫度會下降。可到達的最低溫度我們稱為基溫(base temperature)，約為 0.25 K。

3-2-2c 溫度計與加熱器

我們所使用的 ^3He refrigerator 共有五顆溫度計與兩顆加熱器。在 ^3He refrigerator 使用的溫度計總類有三種。Carbon 溫度計，工作溫度範圍 1.4-300 K，適合在磁場下工作。Cernox 溫度計，工作溫度範圍 0.1-325 K，1 K 以上適合在磁場下工作。RuO₂ 溫度計，為一個 2200 Ω 的電阻，工作溫度範圍為 0.01K-40K，適合磁場下工作。

^3He sorb 的溫度計為 Allen-Bradley 溫度計，未校正。1K plate 的溫度計為 RuO₂ 溫度計，未校正。 ^3He pot 有三顆溫度計，一顆溫度計為 Cernox，校正溫度 1.4-325 K，兩顆 RuO₂，一顆未校正，一顆校正溫度為 0.25 mK-4.2 K。

一顆加熱器位於 ^3He sorb，電阻為 60 Ω 。另一顆位於 ^3He pot，為 firerod 加熱器，是由兩顆 firerod 串連，電阻為 2×100 Ω 。當溫度低於 1.4 K，我們使用這顆加熱器加熱 sorb 去控制 ^3He pot 的溫度。當溫度高於 1.4 K，我們使用 ^3He pot 的加熱器來控溫。 ^3He refrigerator 的溫控器(ITC503)最大可外加 40 V 至加熱器，但建議勿超過 30 V，否則會對加熱器造成永久性傷害。

3-2-2d 超導磁鐵

超導磁鐵系統主要包含超導線圈與 switching heater。超導線圈材質為 NbTi，超導溫度~10 K，在 4.2 K 最大可通入 48.165 A 的電流產生 4 T 的磁場，最快加電流速率為 12.041 A/min。超導磁鐵工作時(指加電流至超導線圈產生磁場)，超導線圈需浸泡在液氮(4.2 K)裡，確保線圈為超導態，否則因外加大電流會使線圈會發熱，造成液氮大量揮發，有氣爆的危險。switching heater 在 4.2 K 時電阻為 100.8 Ω ，工作時通入電流為 50 mA。

超導磁鐵系統示意圖如圖 3-10 所示。當我們將超導磁鐵浸泡在液氮裡時，此時全部的超導線(黑線)都為超導態，如果我們現在外加電流進入系統，電流會走圖示中的(a)路徑而不會流入線圈。所以我們若要將電流加進線圈內我們必須先將 switching heater 打開一段時間(建議值為 40 秒以上)加熱 switching heater 下方的線路，使之離開超導態，之後再加電流，此時電流會走(b)路徑流入線圈，產生磁場。

超導磁鐵系統工作有兩種模式，sweep 及 persistence mode。Sweep mode 是在使用磁鐵時，switching heater 保持打開，所以可以隨時間增加或減少磁場。Persistence mode 則先加到一定磁場，將 switching heater 關掉，等待一段時間(建議值為 40 秒)使原本被加熱的線路回到超導態，使外加電流又走(a)路徑，在把電流降為零，這樣(a)路徑的電流為零，但線圈內還是保持原本所加的電流，固定在原本的磁場。我們可以根據量測上的需求選擇不同工作模式。

3-3 量測電路

在我們的實驗上我們會依據量測數據的性質使用兩種電路。我們大部分的數據是使用送電流量電壓(送 I 量 V)的電路量測。但因為我們量測穿隧接點樣品，我們需量測超導能隙來證明我們的電導數據主要是來自於穿隧機制貢獻，但當鋁電極進入超導態時，費米面附近沒有態存在，理論上電導會趨近於零(即電阻會趨近無限大)，這時候之前的量測方法就不再適用，需改用加電壓量電流(送 V 量 I)的電路量測。

電路圖及電路說明如圖 3-11 及其圖說。



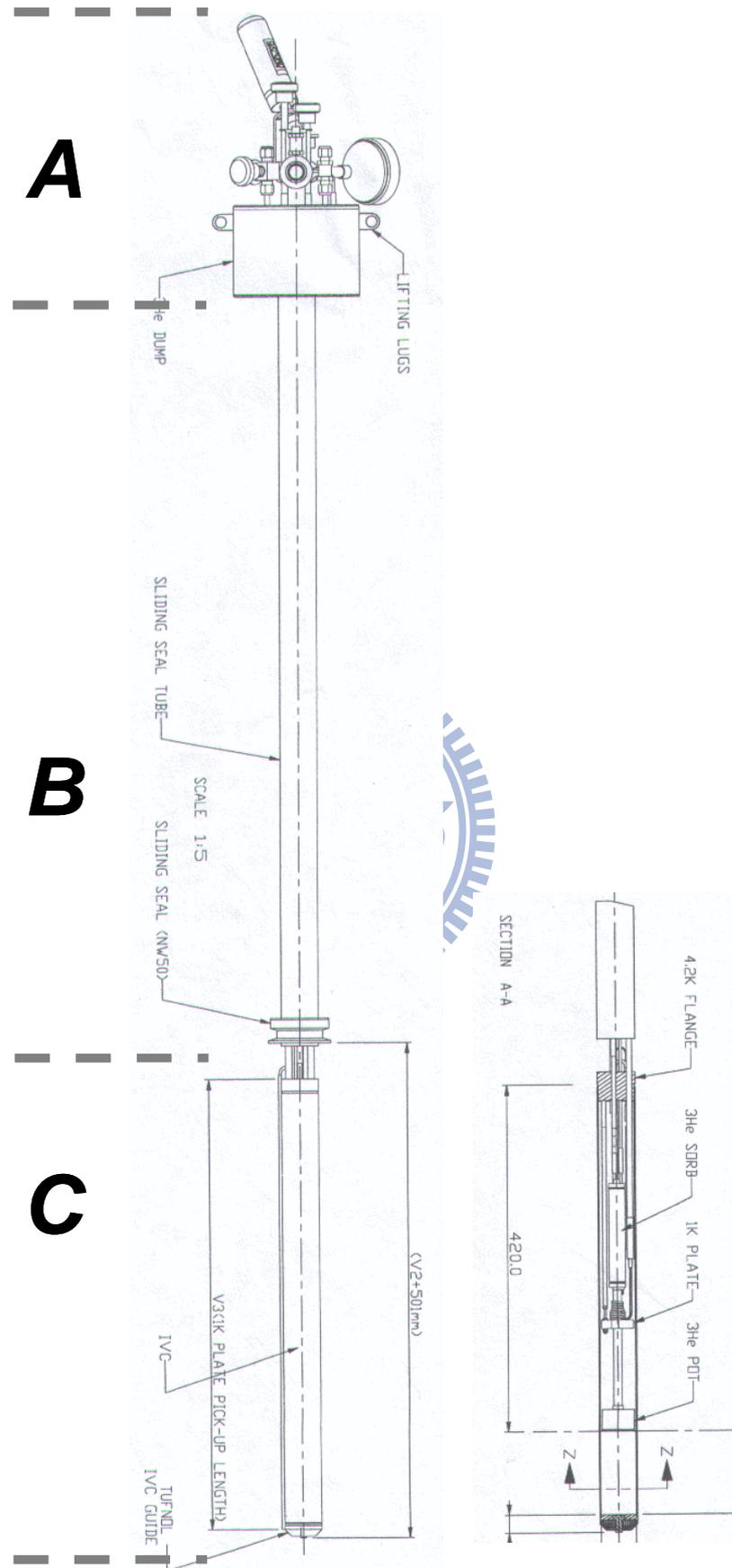


圖 3-7 ^3He refrigerator 構造圖。

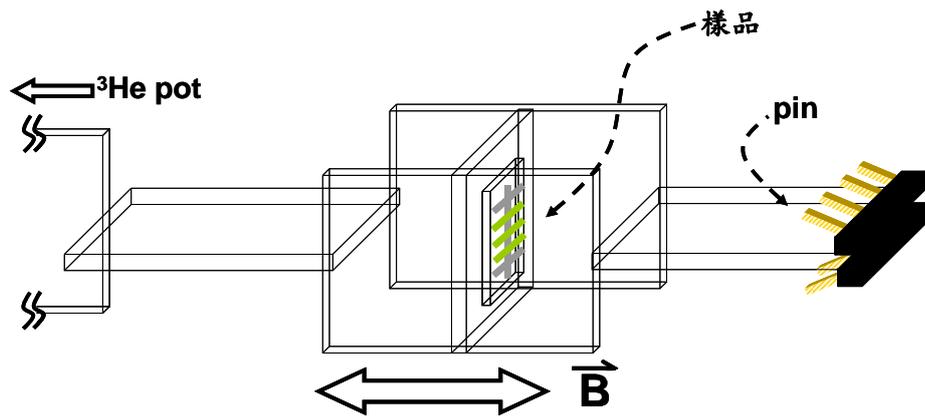


圖 3-8 ^3He refrigerator 上的樣品座示意圖。

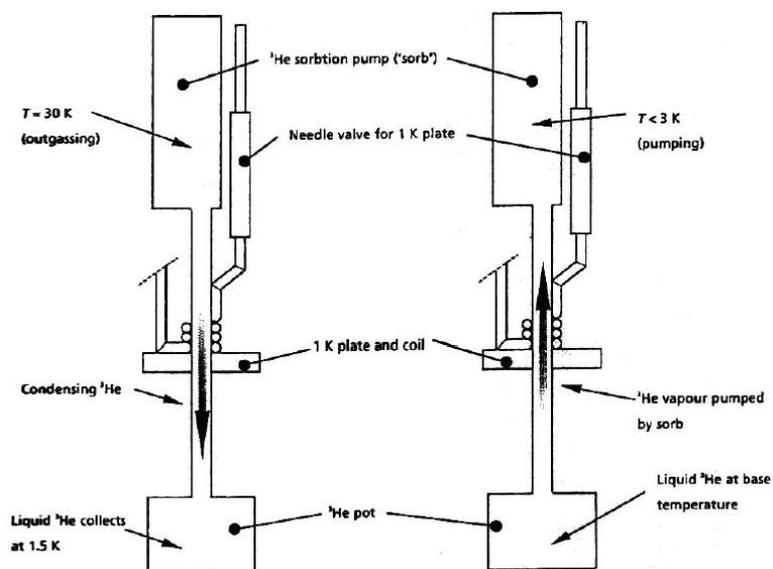


圖 3-9 使用 ^3He 冷卻工作示意圖。

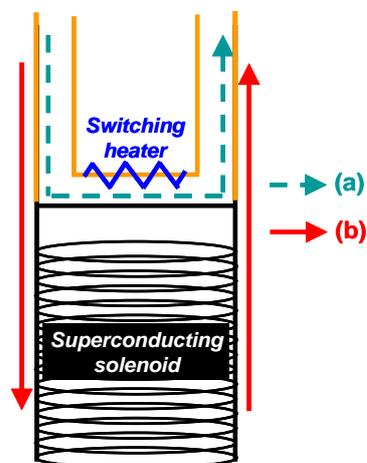


圖 3-10 超導磁鐵示意圖。

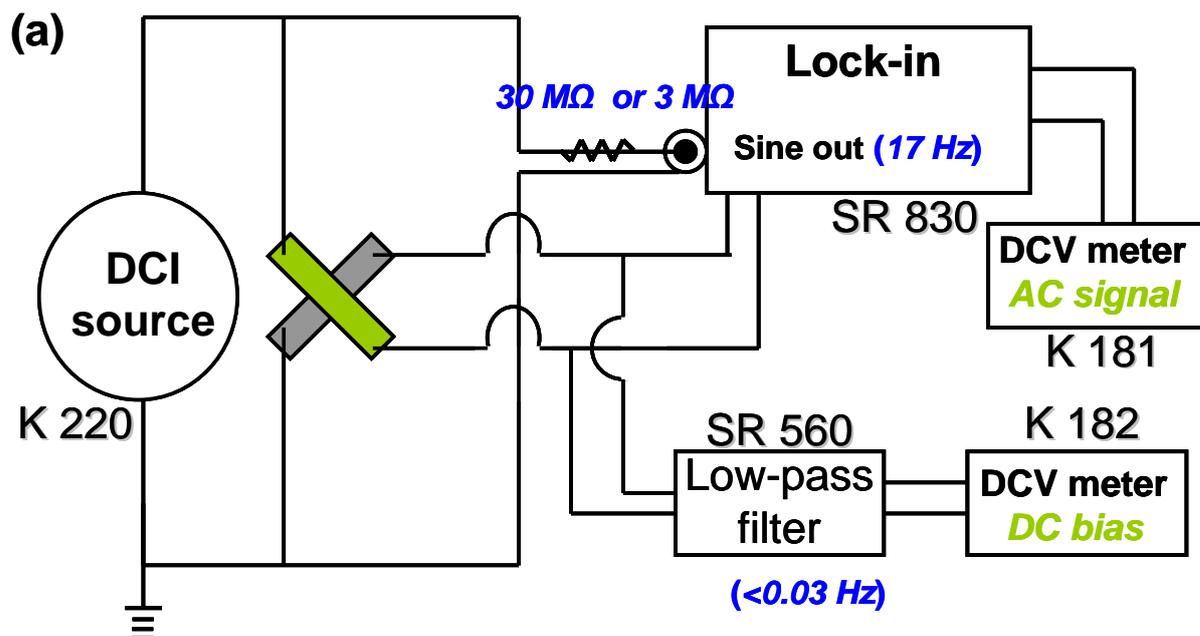


圖 3-11 量測電路[23]。(a) 送電流量電壓。

我們使用一直流訊號 (直流電流源 Keithley220; 輸出阻抗 $100\ \Omega$) 疊加交流訊號 (交流訊號源 Lock-in SR830; Sine out 頻率 $f=17\ \text{Hz}$) 的技術量測穿隧接點之微分電導訊號。我們使用直流電流源產生一直流電流 I_{DC} ，並在 Lock-in 的 Sine out 串聯一大電阻 (串聯電阻為 $\sim 30/3\ \text{M}\Omega$; 取決於接點電阻大小，目標是將接點在 $V_{DC}=0$ 時外加一 dV 接近 $100\ \mu\text{V}$ 。) 使之輸出一固定交流電流 dI ，兩者疊加 $I_{DC} + dI$ 輸入至接點兩側。我們將接點輸出的訊號分為二，其中之一通過一 Low-Pass Filter (SR560) 過濾留下低頻訊號 ($<0.03\ \text{Hz}$)，之後使用一精密電壓計 (Keithley181) 讀取剩下的直流電壓訊號 V_{DC} 。另一則接到 Lock-in 鎖定量測 $17\ \text{Hz}$ 頻率的電壓訊號 dV ，再由 Lock-in 將訊號等比例地轉化為一 DC 電壓訊號輸出至一精密電壓計 (Keithley182) 讀值。因此我們得到在外加偏壓 V_{DC} 的微分電導 $G \equiv dI/dV$ 訊號。

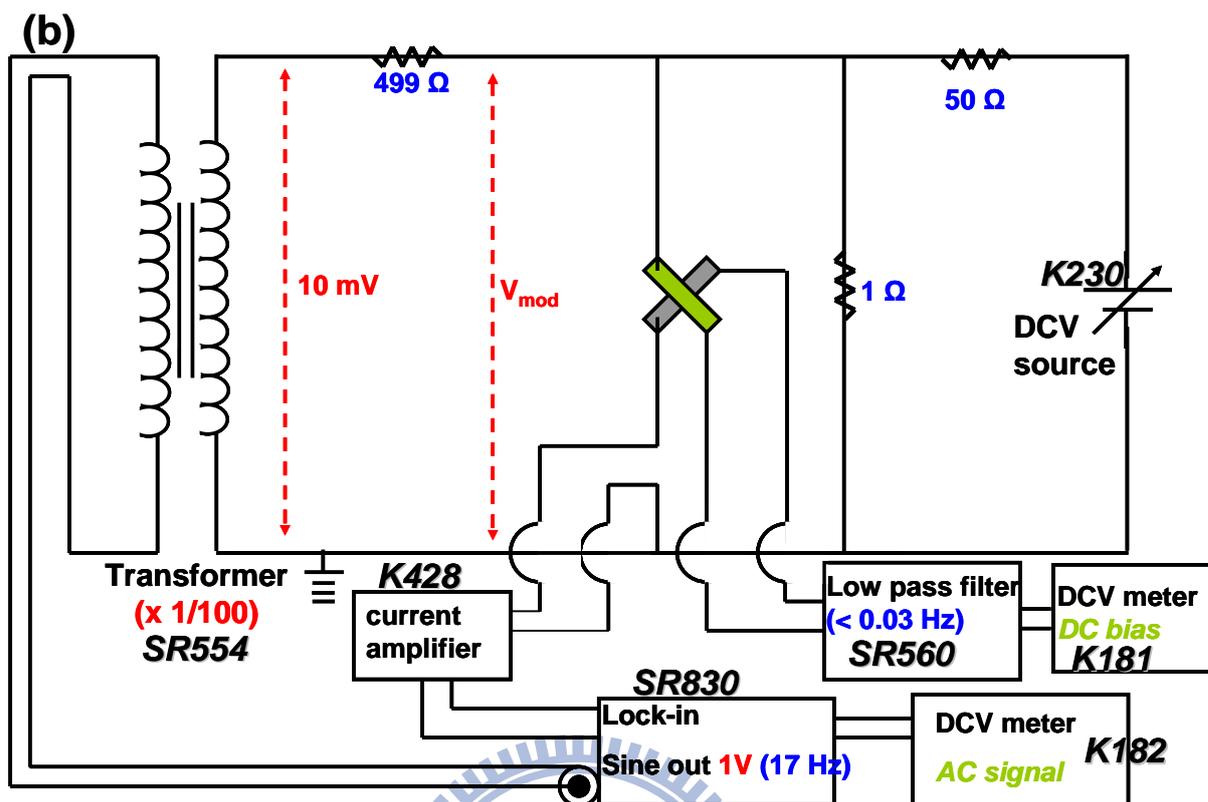


圖 3-11 量測電路[23]。(b) 加電壓量電流。

我們使用一直流電壓源(Keithley230)輸一直流電壓訊號 $V_{DC,in}$ ，並做分壓的動作使加在接點

兩側的電壓為 $V_{DC} \approx \frac{1}{(50+1)} \times V_{DC,in}$ 。並使用 Lock-in(SR830)直接輸出一交流電壓訊號 1 V(17

Hz)，並使用一類比式變壓器(SR554)降壓($\times 1/100$)為 10 mV，並做分壓的動作使加在接點量

測的交流電壓為 $dV = V_{mod} \approx \frac{1}{(499+1)} \times 10 \text{ mV} = 20 \mu\text{V}$ ，直流與交流訊號疊加後輸入接點兩

側。我們將一電流放大器(Keithley428)與接點串聯將其 dI 轉成電壓訊號並放大後輸入 Lock-in

讀取其交流訊號，再由 Lock-in 將訊號等比例地轉化為一 DC 電壓訊號輸出至一精密電壓計

(Keithley182)讀值。另外，由接點輸出的訊號我們接到一 Low-Pass Filter(SR560)過濾留下低頻

訊號($< 0.03 \text{ Hz}$)，之後連接到一精密電壓計(Keithley181)讀取剩下的直流電壓訊號 V_{DC} 。因此

我們可以得到在外加偏壓 V_{DC} 的微分電導 $G \equiv dI / dV$ 訊號。

四、 結果與討論

4-1 超導能隙

我們的主題是研究穿隧機制下近藤效應對微分電導的修正，所以我們必須確定實驗上量測得到的微分電導主要是來自於穿隧機制的貢獻，但該如何確定呢？超導能隙就是一個很有力的工具。關於傳統超導體，當溫度低於一臨界溫度(即超導溫度； T_C)，其中的電子會透過聲子為媒介形成 Cooper pair 導致能量降低，造成費米面附近一範圍內沒有電子態存在，其就是所謂的超導能隙。我們的樣品其中一側電極為鋁(Al)，一側電極為鈮(Y)。鋁為傳統超導材料，所以當溫度低於鋁的超導溫度，鋁電極就會出現超導能隙，在能隙內因為沒有態存在，所以電子無法穿隧，在 $T=0$ 時理論上穿隧電流為零，如圖 6-4。但在實驗上，除非絕緣層完全沒有漏洞(pinhole)才會發生上述電流為零情況，若絕緣層存在漏洞，兩側電極有可能會透過金屬—金屬直接接觸而產生漏電流，此種電流的傳輸並不是經由穿隧機制，其並不受超導能隙影響。因此我們可以利用在超導能隙內外所得到微分電導的比值來判斷實驗上得到的微分電導行為是否為穿隧機制所支配。

圖 4-1 為 Al/AIO_x/Y 接點樣品的超導能隙圖，量測的 $T \sim 0.25 K$ 。我們可以估計穿隧與漏電流的比值 $\frac{G_{pinhole}}{G_{tunnel}} \sim \frac{G(0, T < T_C)}{G(V > \Delta, T < T_C)}$ (其中 2Δ 為超導能隙寬度。這裡我們保守估計假設 $G(0, T < T_C) = G_{pinhole}$ ，意即將 $G(0, T < T_C)$ 全部視為漏電流的貢獻而不考慮實驗上有限溫度對 $G(0, T < T_C)$ 的影響。)，且由 BCS 理論[24]的預測 $2\Delta(T \rightarrow 0) = 3.5k_B T_C$ 我們可以估計樣品鋁電極的超導溫度(在這裡我們假設鋁的 Δ 在 $0 < T < \sim 0.25 K$ 間變化不大，即 $\Delta(T \rightarrow 0) \approx \Delta(\sim 0.25 K)$)， T_C 估計值與 $G_{pinhole}/G_{tunnel}$ 的比值列於表 4-1。我們得到結果為 $G_{pinhole}/G_{tunnel} \ll 1$ ，證明我們量測所得到的微分電導行為主要由穿隧機制所支配。

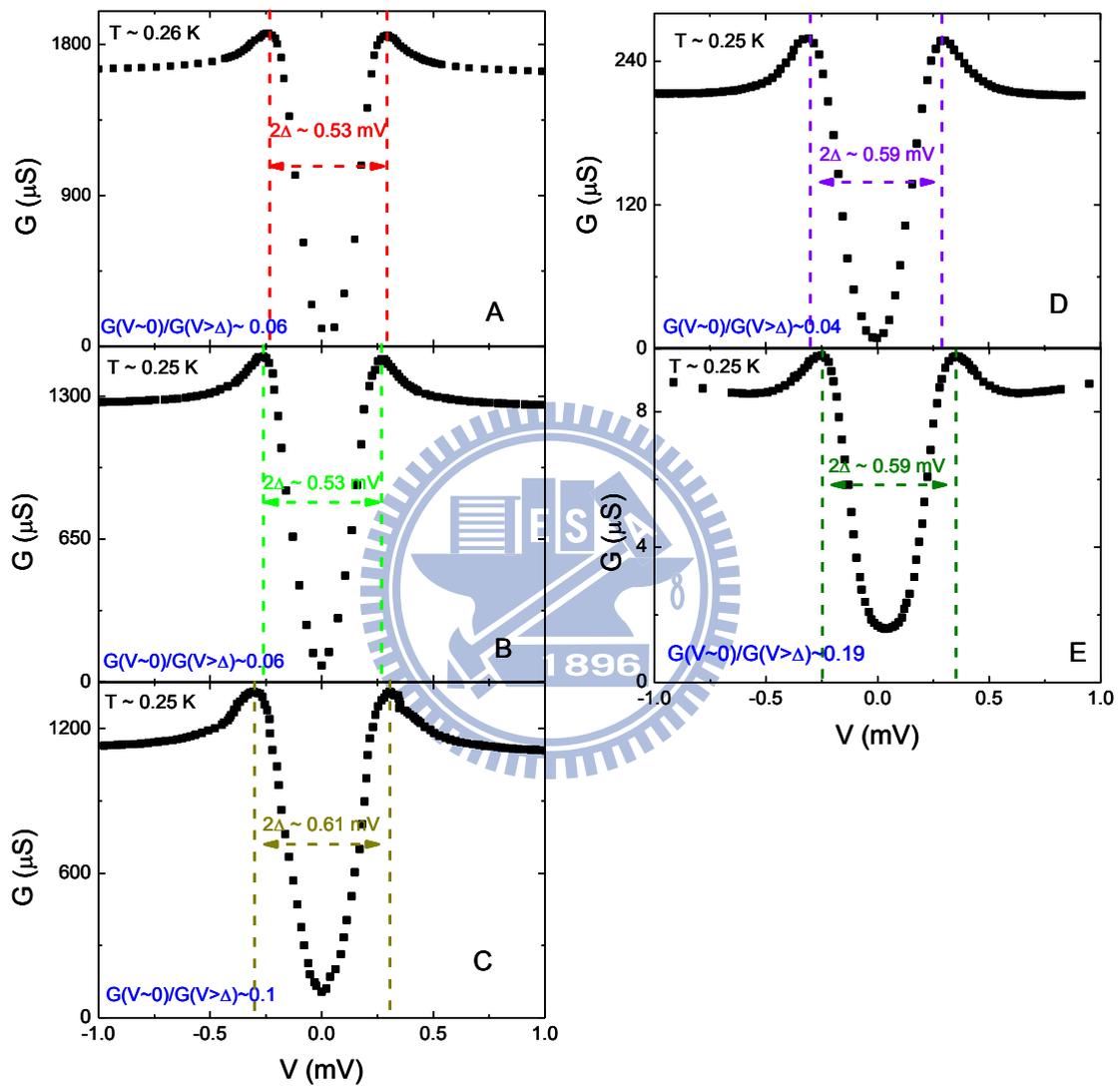


圖 4-1 Al/AIO_x/Y 穿隧接點樣品的超導能隙圖。

表 4-1 $Al/AIO_x/Y$ 接點樣品資訊。包含穿隧接點面積、超導溫度估計值、絕緣層漏洞與穿隧貢獻電導比值與室溫接點電阻值。

樣品編號	接點面積 (mm^2)	T_C (K)	$G_{pinhole}/G_{tunnel}$	$R_j(300K)$ (Ω)
A	0.5×0.8	1.76	0.06	170
B	1.2×0.5	1.76	0.06	310
C	1.2×0.5	2.02	0.10	490
D	1.0×0.8	1.96	0.04	2300
E	0.5×0.8	1.96	0.19	12700

4-2 微分電導對溫度與偏壓的關係

這一節我們敘述在無外加磁場環境下觀察到微分電導對溫度及偏壓的行為。在前面介紹過我們的接點樣品其中一側電極為 Al，其為超導材料，而超導會對穿隧微分電導產生影響，因此我們必須確保量測時 Al 電極保持正常態。由我們先前估計 Al 的超導溫度 (表 4-1)，決定在無外加磁場環境下其量測溫度最低為 2.2 K。

4-2-1 零偏壓微分電導 $G(0,T)$ 對溫度的關係

由表 4-1 可以知道每個穿隧接點樣品的室溫電阻 $R_j(300 K)$ ，直觀上 $R_j(300 K)$ 的相對大小即反映接點中絕緣層 (AIO_x) 的相對厚度 L ，即 $R_j(300 K)$ 愈大反映其 L 愈大，我們最後會討論 L 的相對大小可能對其反映出的物理機制造成的影響。我們將樣品分為兩類：小電阻穿隧接點 (樣品編號 A、B、C) 與大電阻穿隧接點 (樣品編號 D、E)。我們集中於討論小電阻穿隧接點樣品所觀察到的微分電導行為與其物理機制，在最後會簡單的敘述在大電阻穿隧接點樣品所觀察到的現象及解釋可能是什麼原因造成兩類樣品的差異。

圖 4-2 為小電阻穿隧接點樣品在無外加磁場下零偏壓電導 $G(0,T)$ 對溫度 T 的關係。在約 $T > 30 K$ ， $G(0,T)$ 隨 T 降低而下降，此行為反映出一般電子穿隧過絕緣層的行為，當溫度下降使電子能量降低導致穿隧機率降低造成 $G(0,T)$ 下降，屬於絕緣性行為，當 $T \leq 30 K$ ，我們觀察到 $G(0,T)$ 對溫度表現出反常行為：在 $T \sim 30-4 K$ ， $G(0,T)$ 隨 T 降低而上升，而當 $T \leq 4 K$ ， $G(0,T)$ 隨 T 降低而下降， $G(0,T)$ 對 T 呈現一非單調(non-

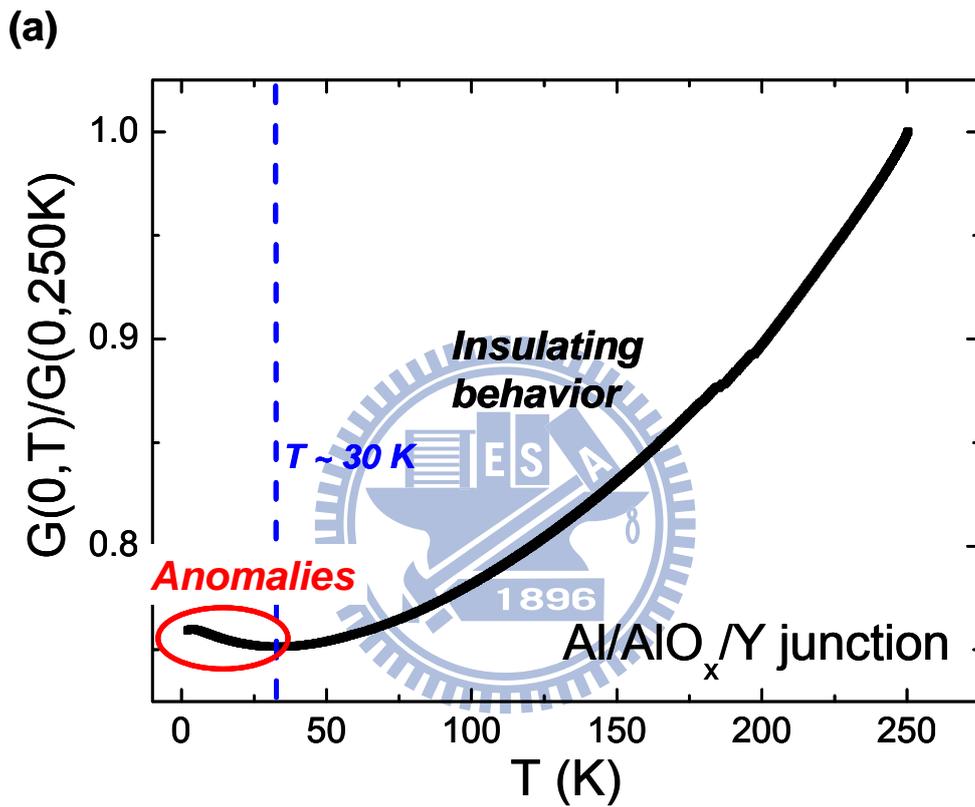


圖 4-2 小電阻穿隧接點的 $G(0, T) - T$ 圖。(a) $T = 250 - 2.2\text{ K}$ 。

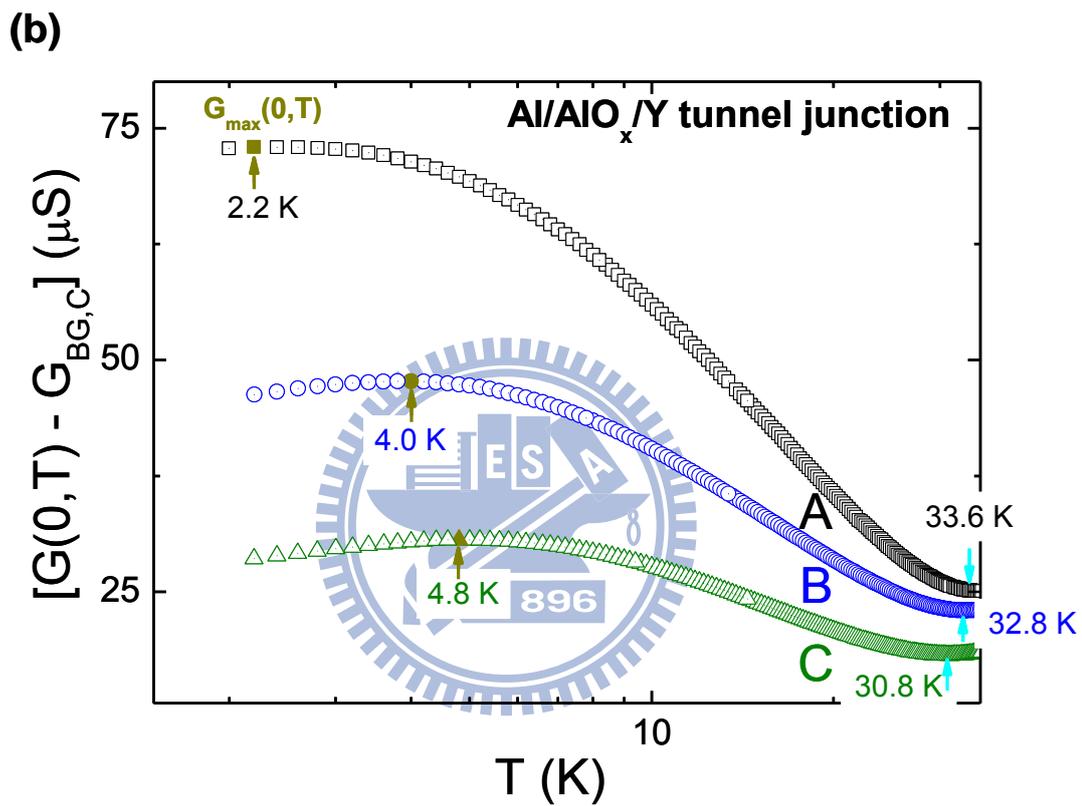


圖 4-2 小電阻穿隧接點的 $G(0,T) - T$ 圖。(b) $2.2 \text{ K} \leq T \leq 35 \text{ K}$ 。其中 $G_{BG,C}$ 由 BDR 模型擬合得到的參數，為一與溫度無關的零偏壓電導。

monotonic)行為。

$G(0,T)$ 的反常行為在不同溫區其對溫度存在某些依存關係，圖 4-3：在 $T \sim 23-11\text{ K}$ ， $G(0,T)$ 會有一段明顯的 $-\log T$ 依存的區域，我們稱此溫區為高溫區域。之後隨 T 遞減至 $T \sim 17-8\text{ K}$ ， $G(0,T)$ 會過渡至 $-\sqrt{T}$ ，稱此為中溫區域。在 $T \sim 10-4\text{ K}$ 有一段 $-T^2$ 依存，隨後當溫度約 $\leq 4\text{ K}$ ， $G(0,T)$ 轉變為隨 T 降低而下降，我們稱此為低溫區域。 $G(0,T)$ 在各溫區對溫度的依存行為整理於表 4-2，其中 T_m 為 $G(0,T)$ 極大值 ($G_{\max}(0,T)$) 所對應的溫度。

表 4-2 穿隧接點樣品在不同溫區 $G(0,T)$ 對溫度的依存關係。

樣品編號	$R_j(300\text{K}) (\Omega)$	$-\log T$	$-T^{1/2}$	$-T^2$	T_m
A	170	23-11 K	16-8 K	7-3 K	$\leq 2.2\text{ K}$
B	310	21-12 K	17-8 K	8-5 K	4.0 K
C	490	21-11 K	18-10 K	11-7 K	4.8 K
溫區		高溫區域	中溫區域	低溫區域	

4-2-2 有限偏壓微分電導 $G(V,T)$ 對溫度與偏壓的關係

4-2-2a 有限偏壓微分電導數據之處理

我們的樣品為穿隧接點，因此可以在接點兩側加一有限偏壓 V 量測其非平衡態微分電導 $G(V,T)$ ，數據表示在圖 4-4，由圖中可觀察到在零偏壓附近存在一峰(peak)，此零偏壓峰值大約是背景訊號的 2%。這裡的背景訊號為一般接點穿隧的貢獻(類似在 $G(0,T)$ 看到的絕緣性行為，只是現在支配電子能量的主要貢獻為偏壓 V)，但這部分並不是我們所想要研究的，所以應該要把背景訊號扣除。由 BDR 模型(附錄圖 6-8 及其圖說)可以知道一不對稱位壘的 $G(V,T)$ 對 V 的行為應該為一對零偏壓有偏移的拋物線，因此我們可以使用一簡單的二次方程式 $G_{BG}(V) = G_{BG,C} + a_1V + a_2V^2$ 來對我們的數據做擬合期望得到背景訊號的參數，其中 $G_{BG,C}$ 、 a_1 與 a_2 設為擬合的參數。我們用 2.2 K 的 $G_{orig}(V,T)$ (為

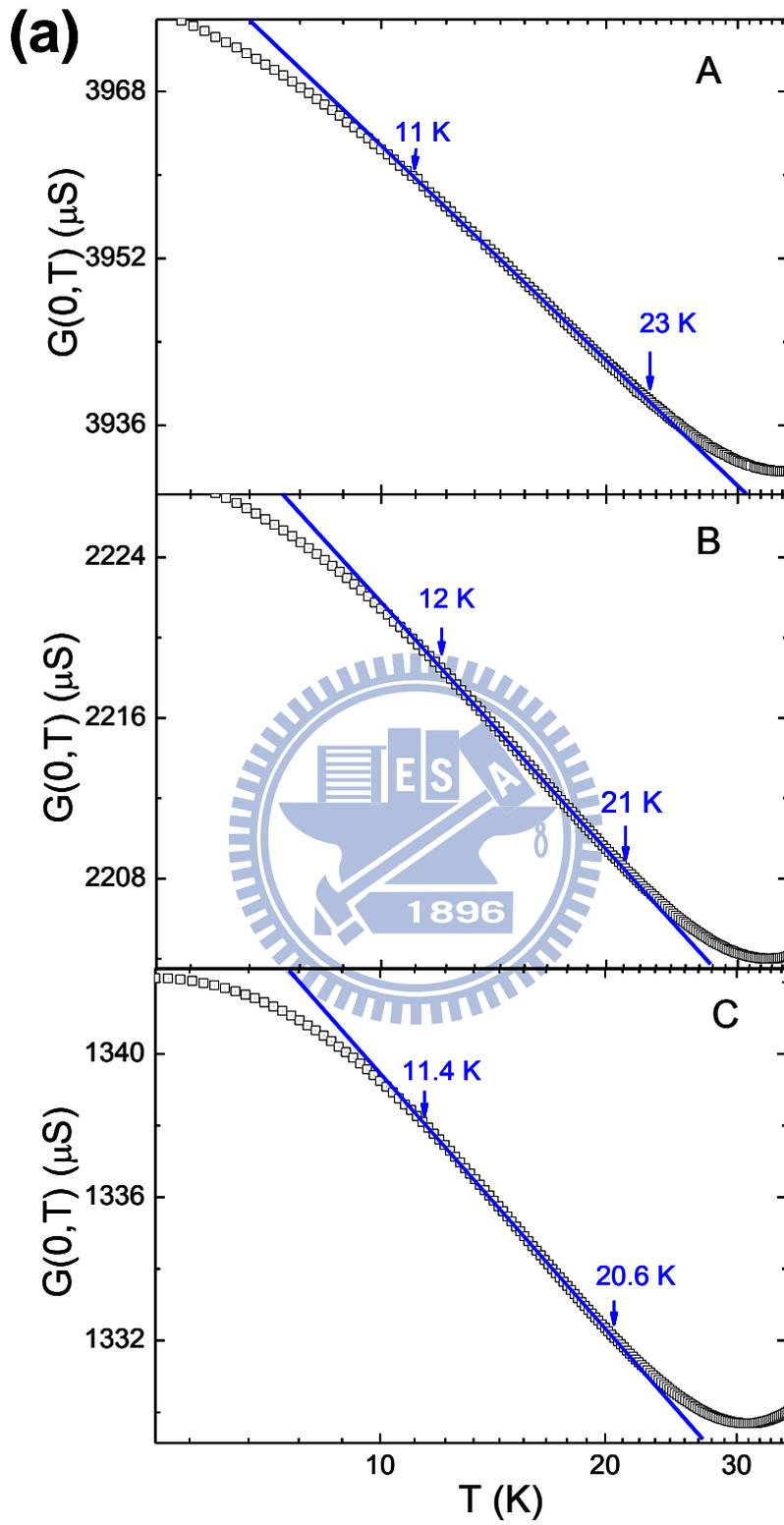


圖 4-3 小電阻穿隧接點的 $G(0, T)$ 對溫度的依存關係。(a) $G(0, T) \propto -\log T$ 。

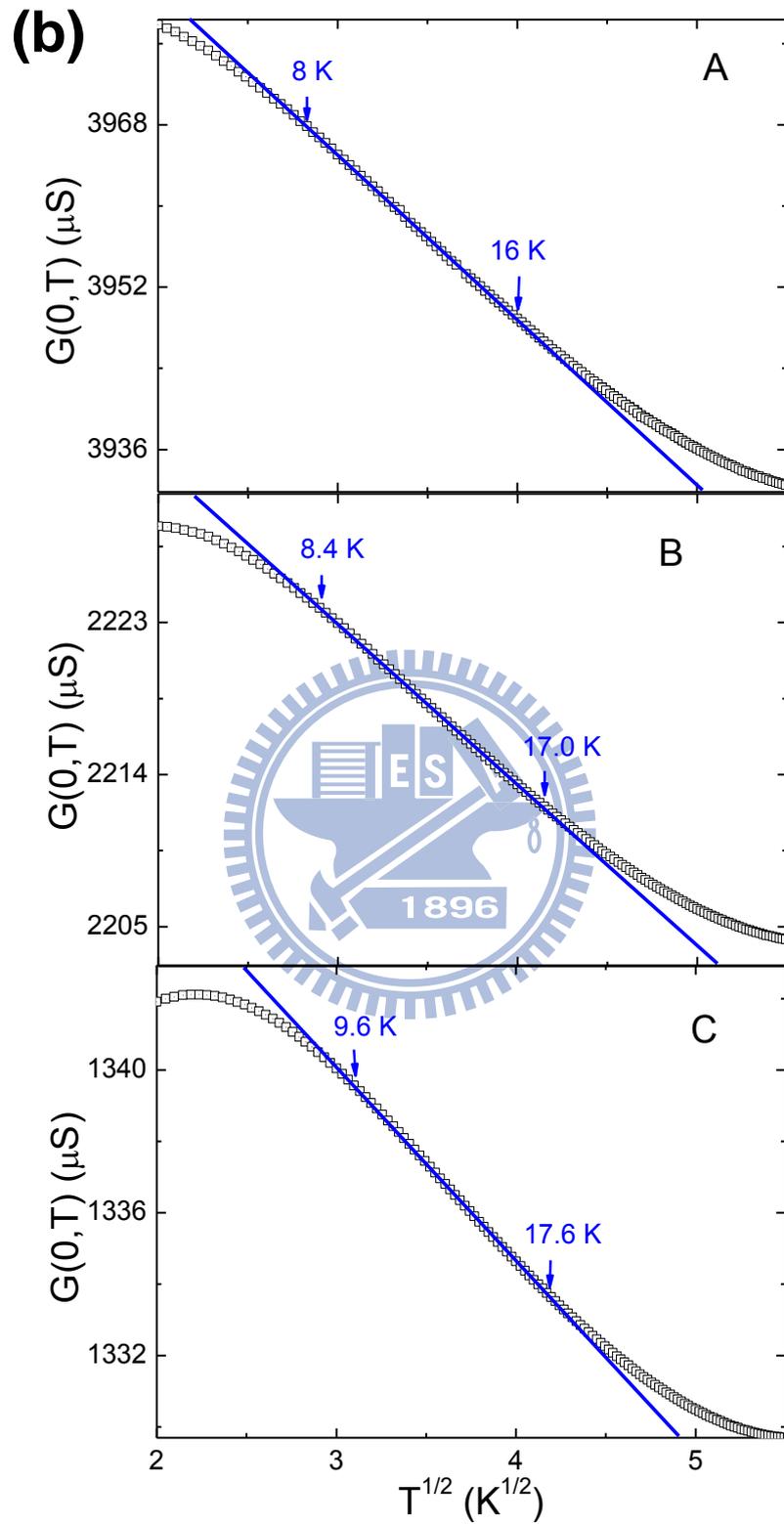


圖 4-3 小電阻穿隧接點的 $G(0, T)$ 對溫度的依存關係。(b) $G(0, T) \propto -\sqrt{T}$ 。

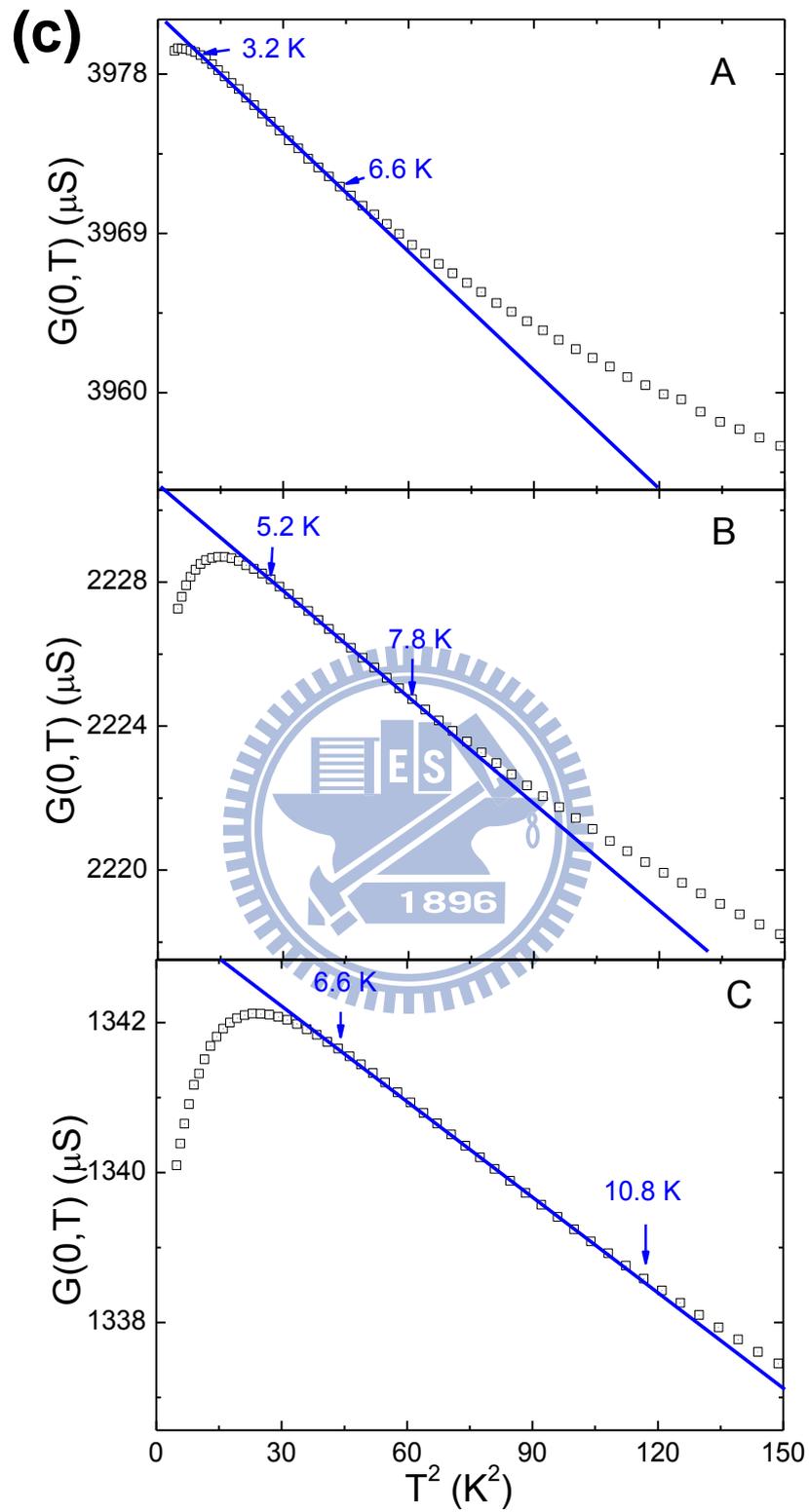


圖 4-3 小電阻穿隧接點的 $G(0, T)$ 對溫度的依存關係。(c) $G(0, T) \propto -T^2$ 。

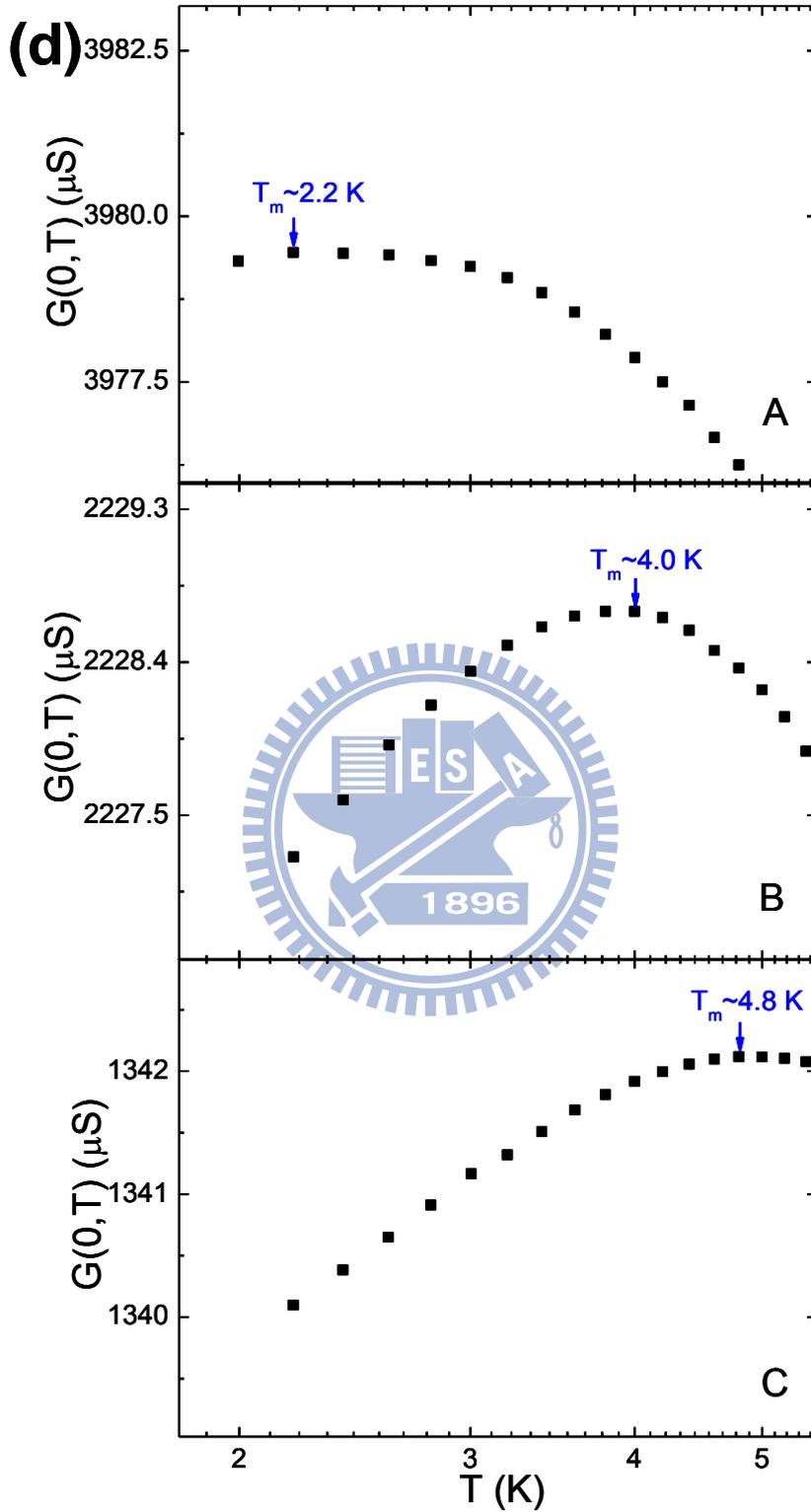


圖 4-3 小電阻穿隧接點的 $G(0, T)$ 對溫度的依存關係。(d) $G(0, T)$ 隨 T 降低而下降。

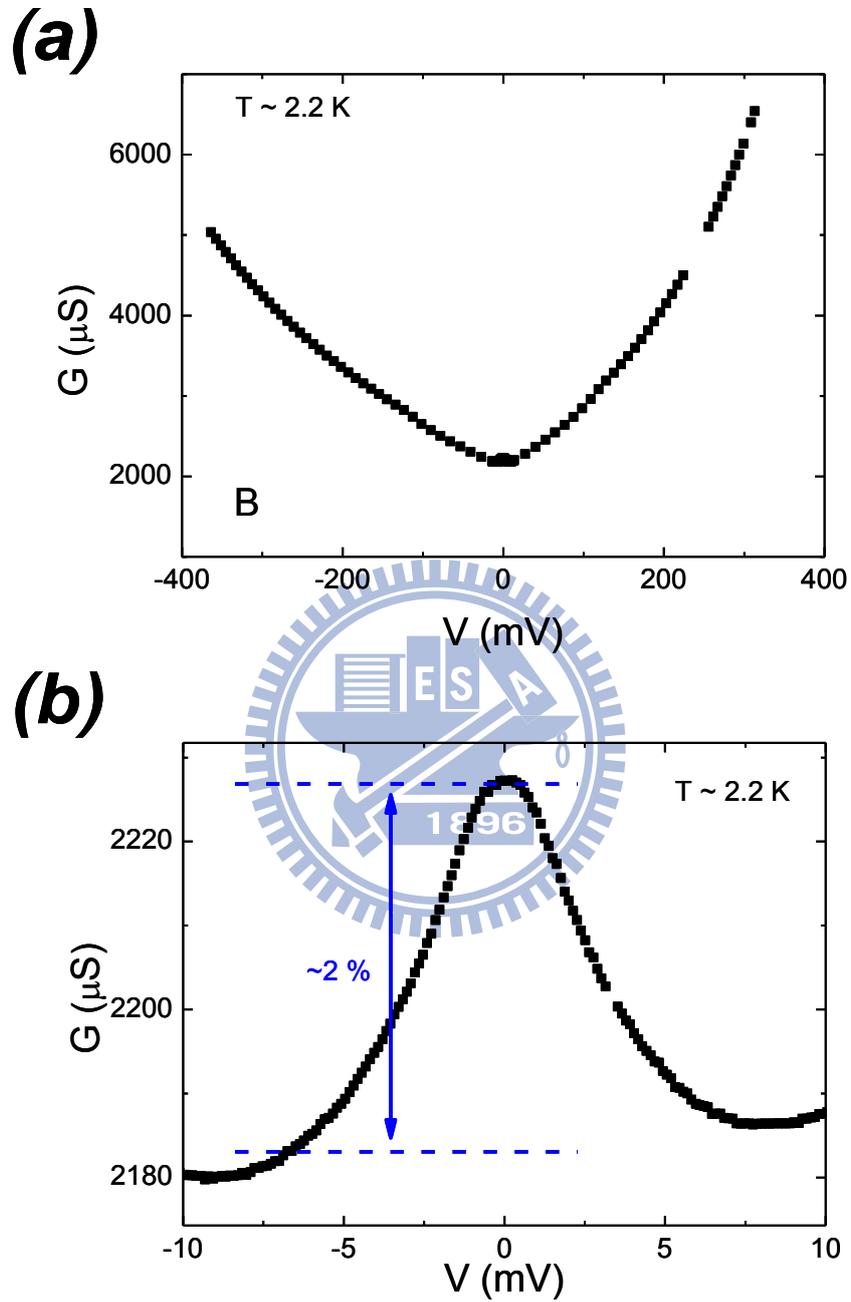


圖 4-4 $\text{Al}/\text{AlO}_x/\text{Y}$ 穿隧接點之原始 $G-V$ 圖。(a) 為大偏壓情況，(b) 在接近零偏壓附近觀察到一峰，其上升比例約為 2%。

原始量測未經任何處理的數據)對 BDR 模型做擬合，擬合的結果發現無法用相同一組參數 ($G_{BG,C}, a_1, a_2$) 去同時描述大偏壓與小偏壓的行為，原因可能是因為 BDR 模型所考慮的因素太過簡單，導致在真實情況中無法完全描述。我們最後使用的方法是先對大偏壓 ($150mV < |V| < 360mV$) 的數據做擬合得到參數 ($G_{BG,C_LBias}, a_{1_LBias}, a_{2_LBias}$)，再對上述的參數做調整為 ($G_{BG,C}, a_1, a_2$) 使其可以在 $V \approx \pm 10mV$ 有較好的擬合結果。背景電導的擬合結果與數據列於表 4-3 與圖 4-5。得到背景電導的參數後，就可以對原始數據扣除其背景電導 $G_{orig-BG}(V, T) = G_{orig}(V, T) - G_{BG}(V, T \sim 2.2 K)$ 。

由理論部分(式子(2.16)、(2.17))可以知道近藤效應對應的非平衡微分電導對偏壓應為一偶函數，即其非平衡電導應以零偏壓點對正負偏壓對稱。因此我們將 $G_{orig-BG}(V, T)$ 做對稱處理，其對稱項微分電導為 $G_{even}(V, T) = \frac{G_{orig-BG}(|V|, T) + G_{orig-BG}(-|V|, T)}{2}$ ，處理後的數據為圖 4-6。

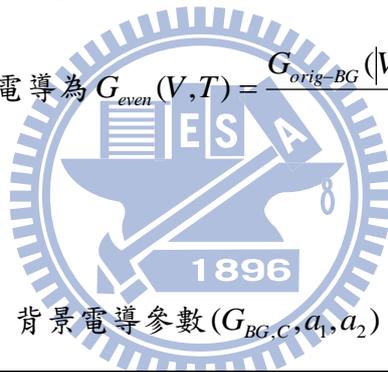


表 4-3 背景電導參數 ($G_{BG,C}, a_1, a_2$) 的擬合結果。

樣品編號	$G_{BG,C}$ (μS)	a_1 (mS/V)	a_2 (S/V ²)
A	3906.5	1.1	0.06
B	2181	0.35	0.02
C	1311.5	0.26	0.014

4-2-2b 對稱項微分電導 $G_{even}(V, T)$ 對溫度與偏壓的定性描述

圖 4-6(a)為 $\sim 35 K - T_m$ 的 $G_{even}(V, T)$ 數據，由圖中我們可以觀察到峰隨著溫度降低其寬度愈窄，峰的高度愈高。其符合近藤效應的定性描述，稱為近藤峰(Kondo peak)。當溫度低於 T_m ，由圖 4-6(b)可觀察到近藤峰的高度會隨著溫度降低($\sim T_m - 2.2 K$)而寬度變寬高度下降，但因為無外加磁場環境下量測溫度最低受限於 2.2 K， $T_m - 2.2 K$ 溫區很窄，因此近藤峰的變化並不是很明顯(在 $\sim T_m - 2.2 K$ ：樣品 B 的近藤峰寬度與高度變化量各別

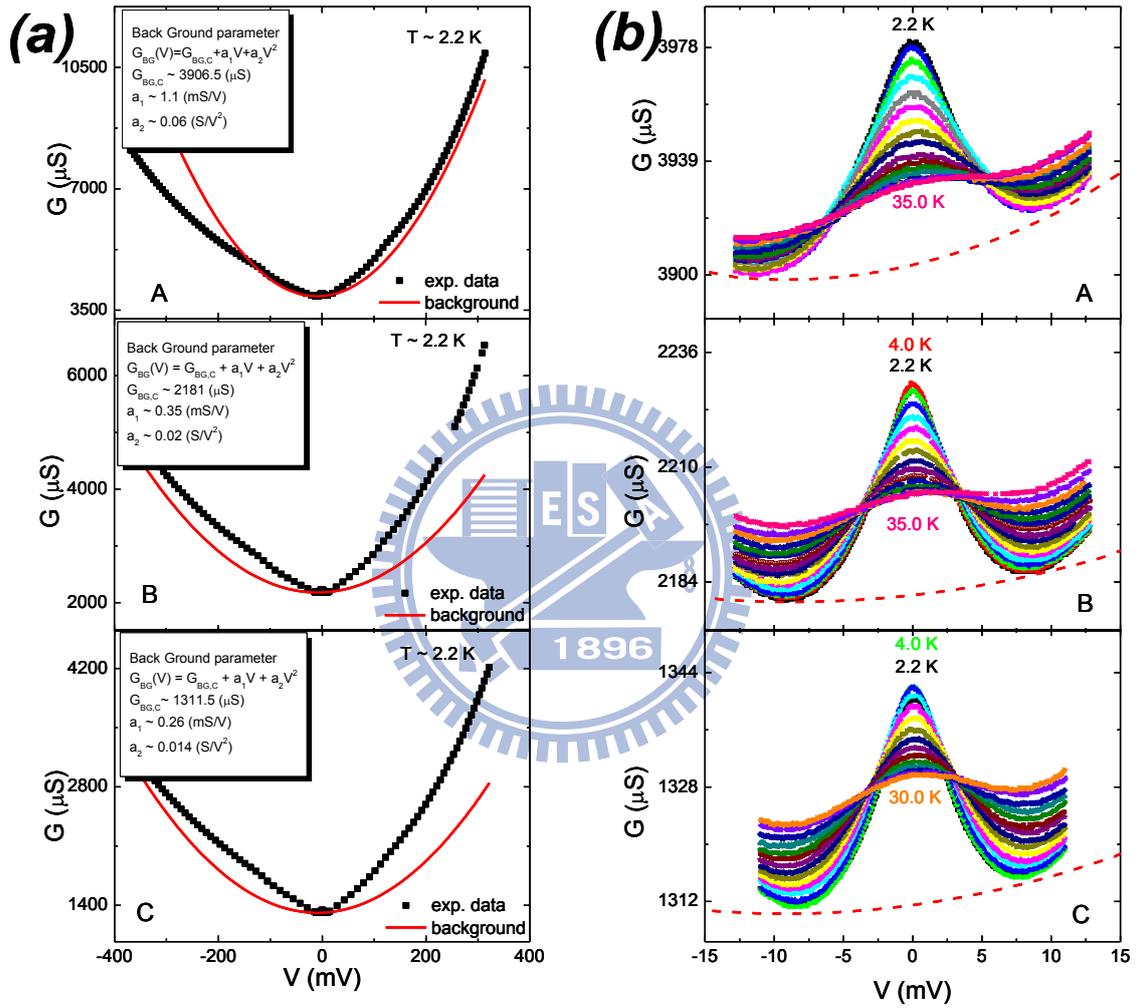


圖 4-5 BDR 模型擬合數據。(a) 大偏壓範圍，(b) 小偏壓範圍之 $G-V$ 圖。

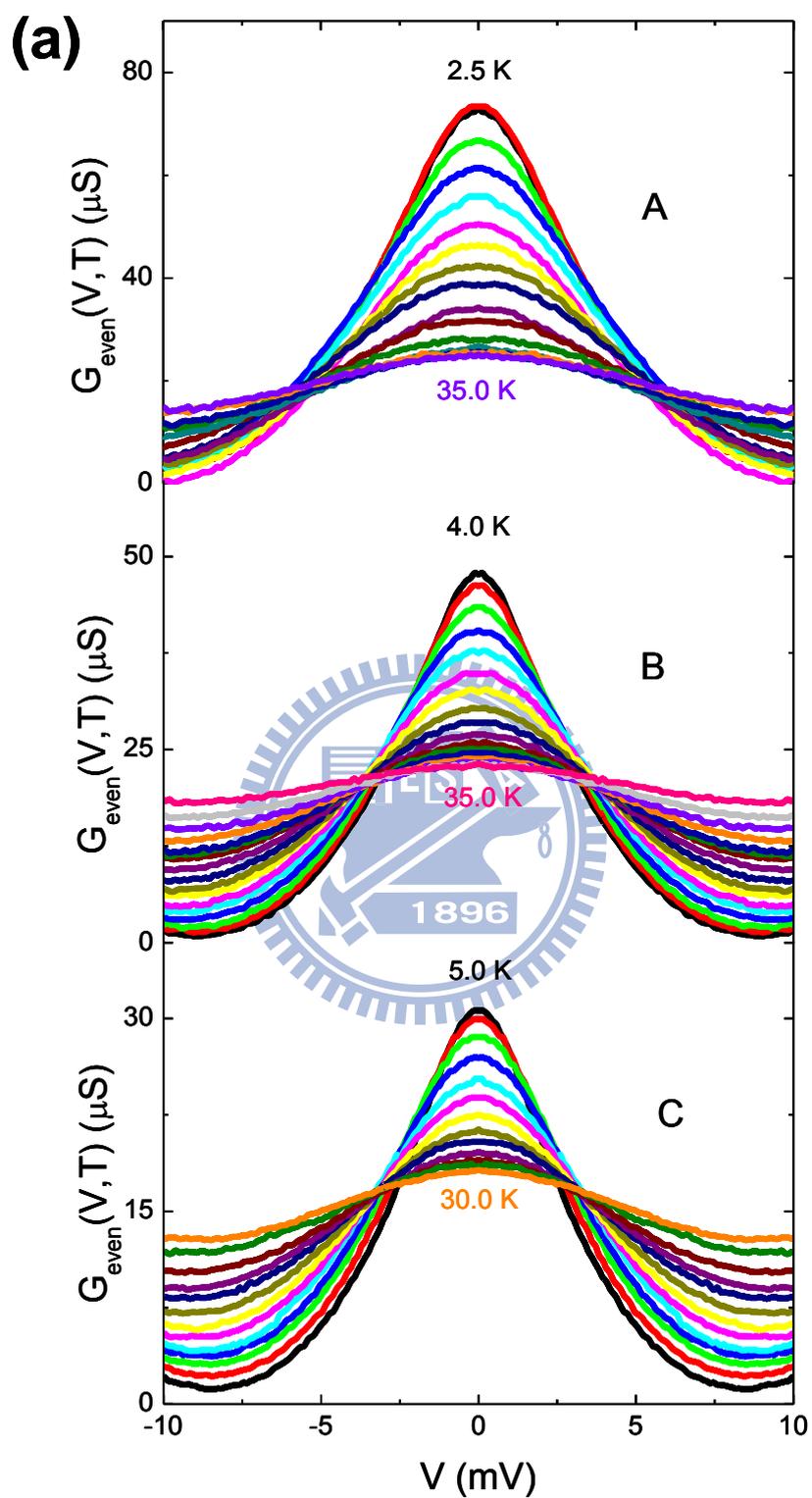


圖 4-6 $G_{\text{even}}(V, T)$ 在不同溫度對偏壓的關係。(a) 近藤峰隨著溫度降低寬度變窄且高度變高。

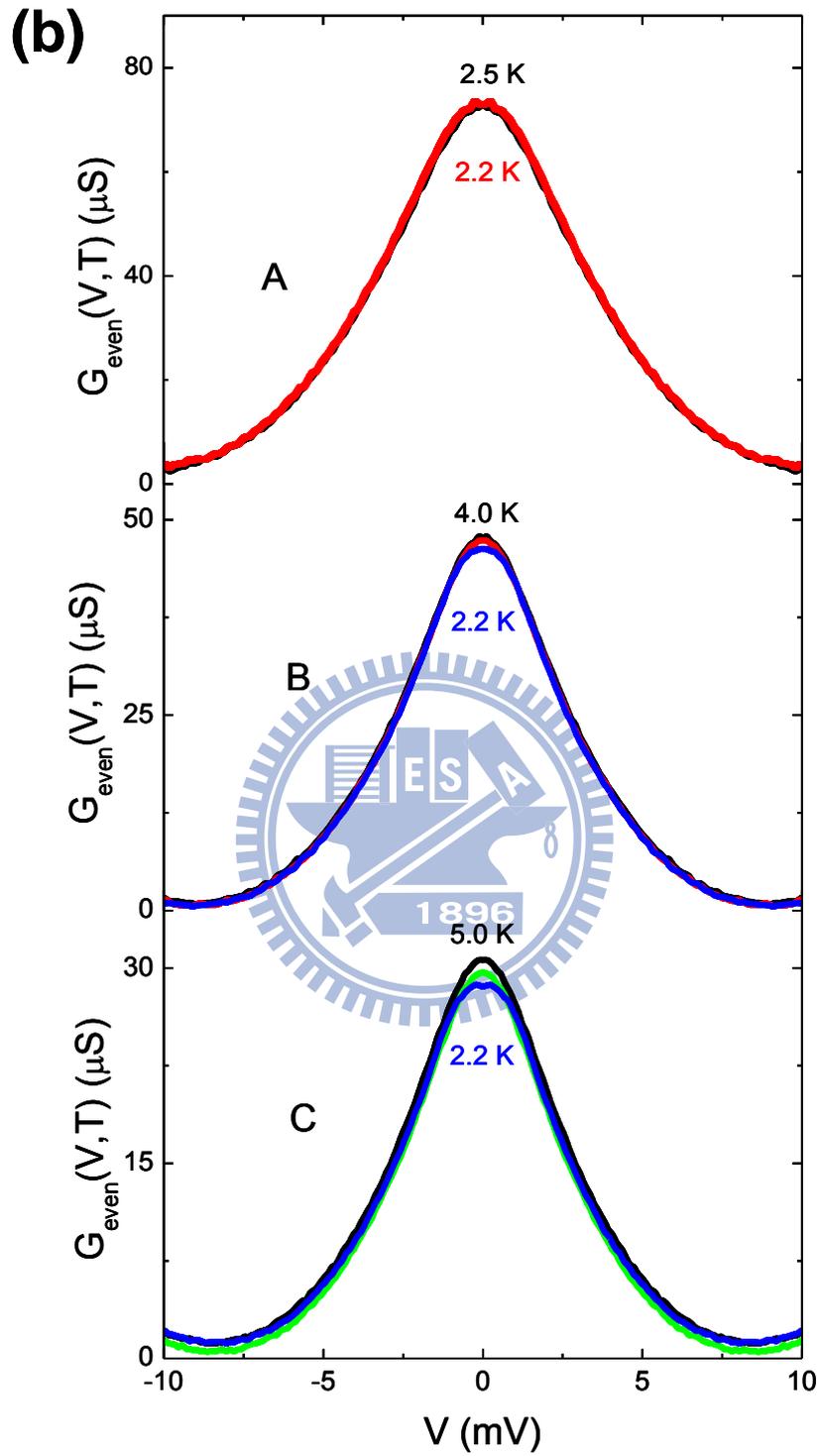


圖 4-6 $G_{\text{even}}(V, T)$ 在不同溫度對偏壓的關係。(b) 近藤峰隨著溫度降低寬度變寬且高度變低。

約為 2 % 與 3 % ; 樣品 C 變化量各別為 4 % 與 7 % ; 樣品 A 因 $T_m \sim 2.2$ K , 因此無法觀察到此現象)。

我們使用近藤峰的半高寬(full width of half maximum; FWHM)來估計接點樣品的近藤溫度 T_K , 其關係為 $FWHM \sim 2k_B T_K$ 。由上一段的描述可以知道近藤峰会隨著溫度愈高高度愈低且寬度愈寬, 因此理論上應該取最低溫(不外加磁場為 2.2 K) $G_{even}(V, 2.2K)$ 的 FWHM 來估計, 但在我們的數據中溫度低於 T_m 後近藤峰高度會下降(但下降不明顯), 其可能會影響 FWHM 的值。因此, 我們分別用 $G_{even}(V, 2.2K)$ 與 $G_{even}(V, \sim T_m)$ 的 FWHM 來估計 T_K (樣品 A 的 $T_m \sim 2.2$ K , 因此沒有另外估計), 兩者估計出來的 T_K 差別約 3% , 結果整理在圖 4-7 與表 4-4 。

表 4-4 由近藤峰的 FWHM 所估計的 T_K 值。

樣品編號	T_K (FWHM at 2.2 K)	T_K (FWHM at $\sim T_m$)
A	41 K	
B	33 K	32 K
C	32 K	31 K

4-3 對稱項微分電導 $G_{even}(V, T)$ 行為之分析

4-3-1 高溫區域之 $G_{even}(V, T)$ - Appelbaum 理論分析

由表 4-2 可知道在高溫區域其 $G(0, T) \propto -\log T$, 其可能對應 Appelbaum 理論所考慮的侷域雜質自旋與導電電子間在弱耦合區間的自旋交換作用。由式(2.16)我們可以寫下

$$G_{even, weak}(V, T) = A + B \times h(V, T) , \quad (4.1)$$

其中 $h(V, T) = \int_{-\infty}^{\infty} \int_{-E_0}^{E_0} \frac{\tanh(\frac{1}{2} \beta \varepsilon')}{\omega - \varepsilon'} d\varepsilon' \times \frac{d}{d\omega} f(\omega - eV) d\omega$, $\beta = \frac{1}{k_B T}$, $f(x)$ 為費米分佈函數,

而係數 A、B 與兩側電極的態密度及電極中電子的耦合與穿隧係數有關。 $h(V, T)$ 為一普適(universal)函數, 給定 V 、 T 後計算其中的積分可得到一常數[23]。而 A、B 並不是普適常數, 但在同一個樣品中, A、B 內原本的變數皆相同, 所以對同一個樣品而言 A、

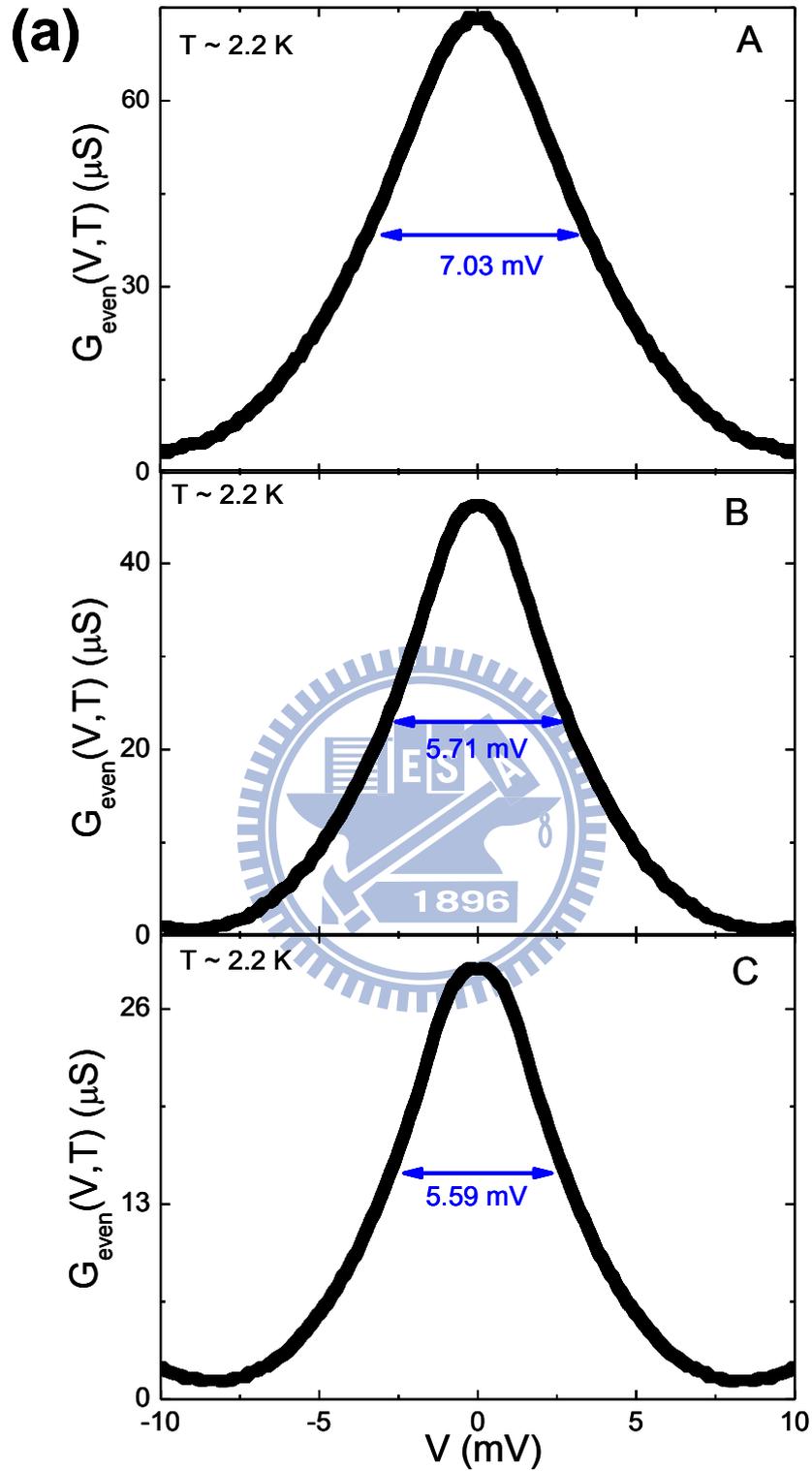


圖 4-7 近藤峰之 FWHM 估計 T_K 。(a) $T=2.2 \text{ K}$ 。估計得到接點樣品 A、B、C 之 T_K 分別約為 41 K 、 33 K 、 32 K 。

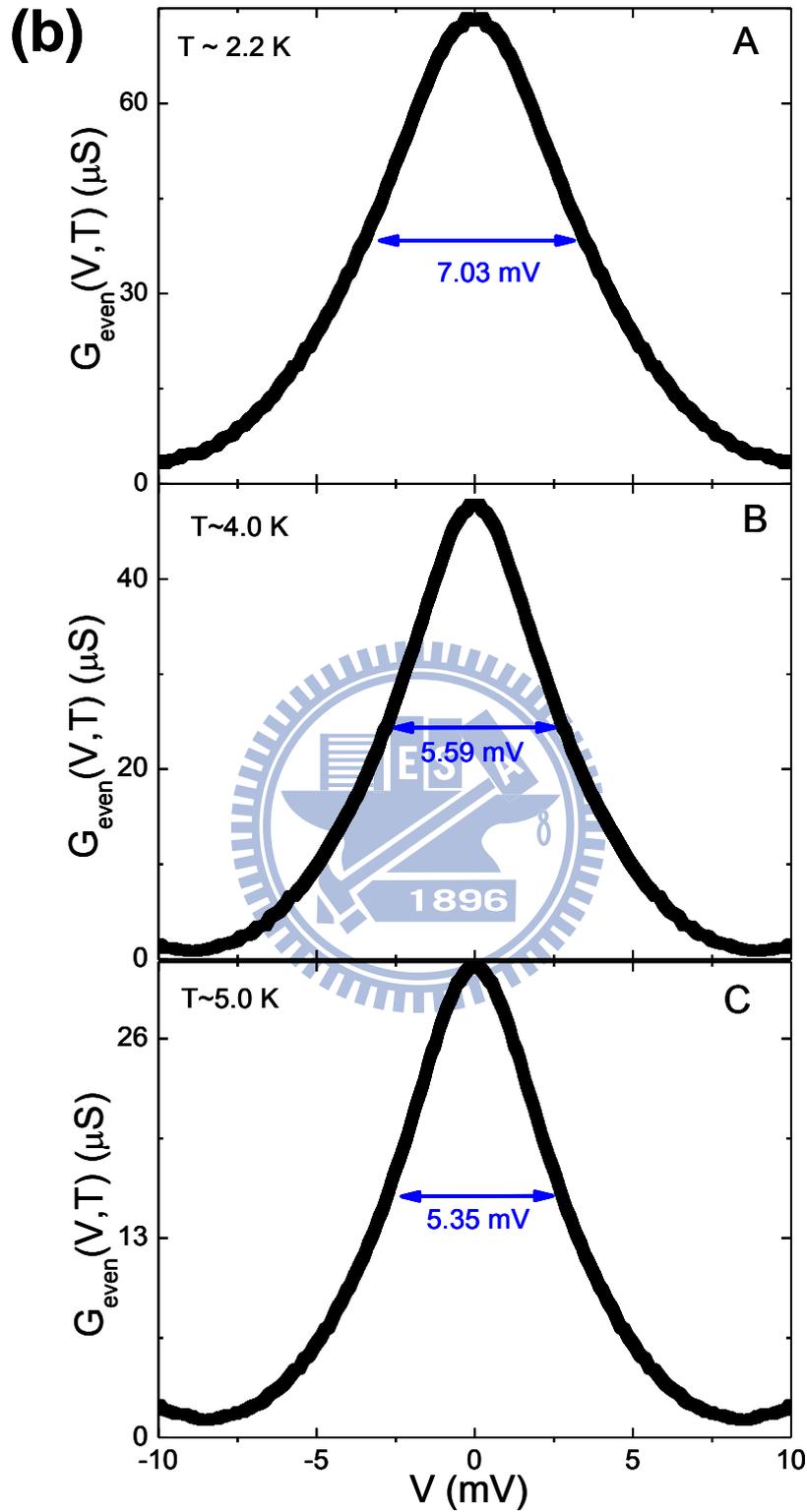


圖 4-7 近藤峰之 FWHM 估計 T_K 。(b) $T \sim T_m$ 。估計得到接點樣品 A、B、C 之 T_K 分別約為 41 K、32 K、31 K。

B 可視為常數。

我們將高溫區域的 $G_{even}(V,T)$ 重整如式(4.1)，畫出 $G_{even,data}(V,T) - h(V,T)$ 圖，符合 Appelbaum 理論的數據應該疊合在同一條斜率為 B，截距為 A 的直線上。由圖 4-8 可以觀察到在大約 $6 < h(V,T) < 9$ 數據疊合於一直線上，對此區域的數據做線性擬合可得到 A 與 B 的值。由擬合參數 A 與 B 的值可以模擬各別溫度之 $G_{even,weak}(V,T)$ (為 Appelbaum 理論預測 $G_{even}(V,T)$ 的行為) 對 V 的行為，圖 4-9 為模擬 $G_{even,weak}(V,T)$ 與實驗數據 $G_{even,data}(V,T)$ 的比較。由圖中可以觀察出在高溫區域 $G_{even,data}(V,T)$ 符合 $G_{even,weak}(V,T)$ 的預測，在高於高溫區域與中、低溫區域的 $G_{even,data}(V,T)$ 則偏離 $G_{even,weak}(V,T)$ 。

4-3-2 中溫區域之 $G_{even}(V,T)$ - 2CK(NFL) scaling 分析

由式(2.21)，我們可寫下

$$\frac{G_{even,2CK}(0,T) - G_{even,2CK}(V,T)}{T^{1/2}} = \begin{cases} b_1 \left(\frac{eV}{k_B T} \right)^2, & \frac{|eV|}{k_B T} \ll 1 \\ b_2 \sqrt{\frac{|eV|}{k_B T}} - b_3, & \frac{|eV|}{k_B T} \gg 1 \end{cases}, \quad (4.2)$$

因為我們的樣品為一個介觀的穿隧接點，所以(4.2)其中的 $b_1 = c \sum_i P_{2i} P_{1i}^2$ ， $b_2 = \frac{3}{\pi} \sum_i P_{2i} \times \sqrt{P_{1i}}$ 與 $b_3 = \sum_i P_{2i}$ 。可將(4.2)中低偏壓 ($|eV|/k_B T \ll 1$) 的部分重寫為[13]

$$G_{even,2CK}(0,T) - G_{even,2CK}(V,T) = f_{2CK}(T) (eV/k_B T)^2, \quad |eV|/k_B T \ll 1, \quad (4.3)$$

其中 $f_{2CK}(T) = b_1 \sqrt{T}$ 。

對中溫區域的 $G_{even}(V,T)$ 數據作 2CK(NFL) scaling 分析。將 $G_{even}(V,T)$ 重整為式(4.2) 大偏壓 ($|eV|/k_B T \gg 1$) 的形式，結果為圖 4-10(a)。由圖中可以看到重整後的數據在 $(|eV|/k_B T)^{0.5} < 1.6$ 疊合於 2CK 普適函數(2CK universal scaling form)的曲線上。將此溫區

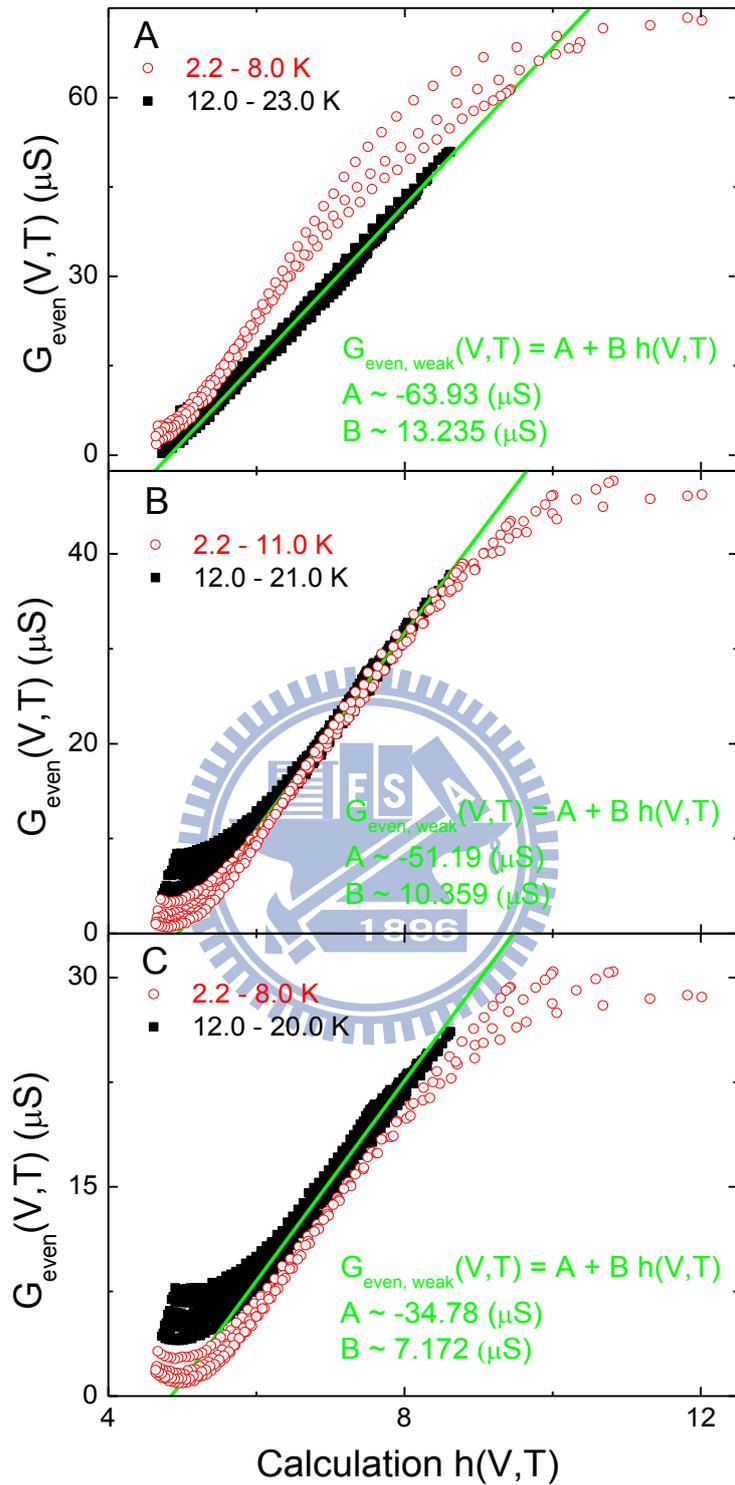


圖 4-8 $G_{even}(V,T) - h(V,T)$ 圖。黑實心點為符合 $G(0,T) \propto -\log T$ 溫區的數據，紅空心點為偏離 $-\log T$ 依存的數據，做為比較參考。實心點數據有一段範圍可以觀察到 G_{even} 對 $h(V,T)$ 有線性關係，對其做線性擬合可以得到參數 A 與 B 的值。

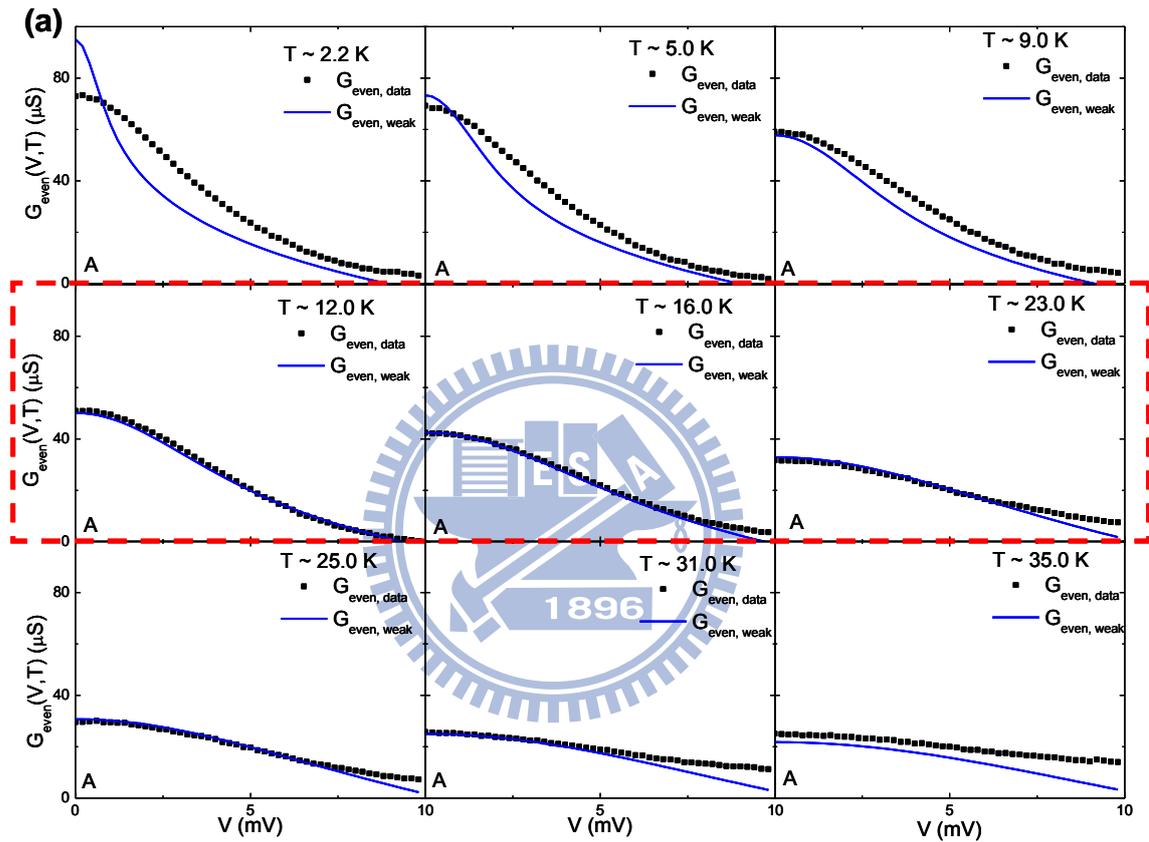


圖 4-9 不同溫度的 $G_{\text{even, data}}(V, T)$ 實驗數據與 $G_{\text{even, weak}}(V, T)$ 模擬數據比較圖。(a) 樣品編號 A。其中實點為 $G_{\text{even, data}}(V, T)$ 數據，實線為 $G_{\text{even, weak}}(V, T)$ 數據，紅色虛線框為在 $G(0, T) \propto -\log T$ 溫區的數據。

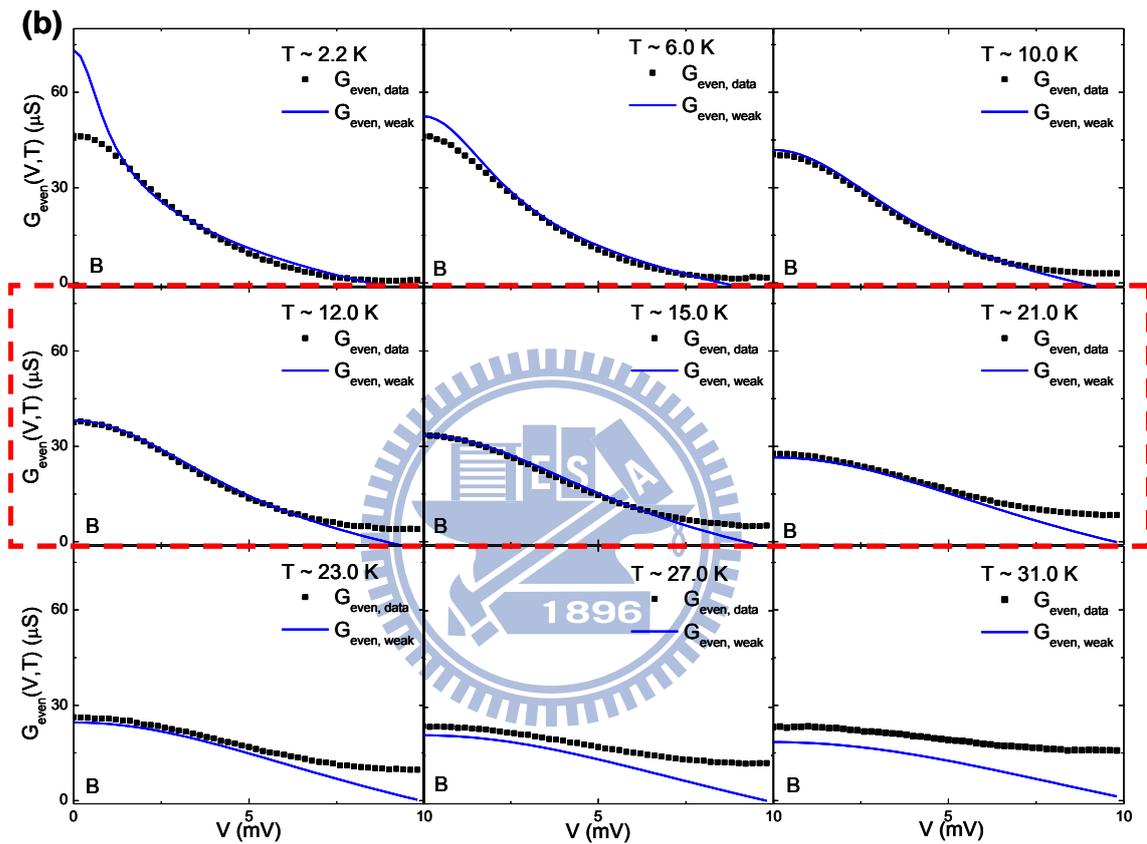


圖 4-9 不同溫度的 $G_{even,data}(V,T)$ 實驗數據與 $G_{even,weak}(V,T)$ 模擬數據比較圖。(b) 樣品編號 B。其中實點為 $G_{even,data}(V,T)$ 數據，實線為 $G_{even,weak}(V,T)$ 數據，紅色虛線框為在 $G(0,T) \propto -\log T$ 溫區的數據。

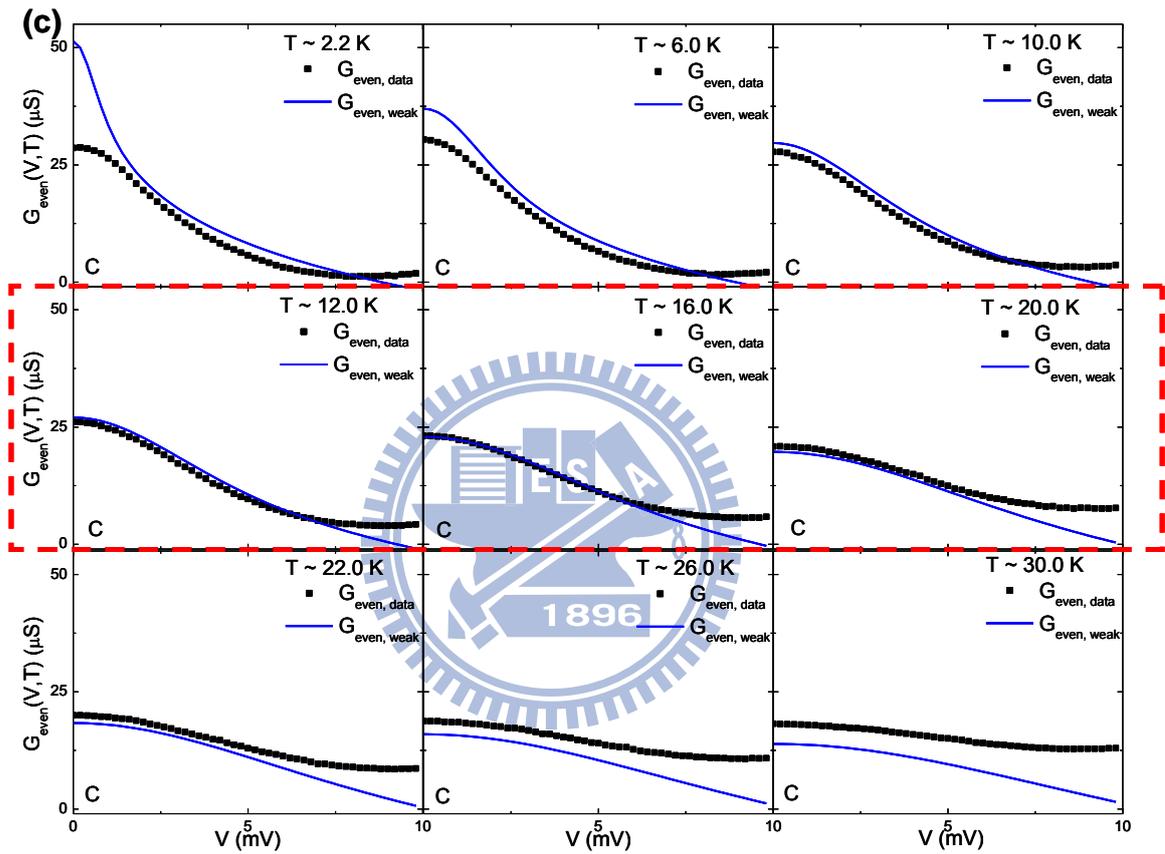


圖 4-9 不同溫度的 $G_{even,data}(V,T)$ 實驗數據與 $G_{even,weak}(V,T)$ 模擬數據比較圖。(c) 樣品編號 C。其中實點為 $G_{even,data}(V,T)$ 數據，實線為 $G_{even,weak}(V,T)$ 數據，紅色虛線框為在 $G(0,T) \propto -\log T$ 溫區的數據。

不同溫度的 $G_{even}(V, T)$ 數據重整為(4.3)的形式，可在小偏壓的範圍 ($|eV|/k_B T)^{0.5} < 1.4$ 觀察到一線性關係(2CK 普適函數只有在 $(|eV|/k_B T) < 1$ 才會近似為 $(|eV|/k_B T)^2$ ，但數值計算的結果[25]指出 $G_{even}(V, T)$ 的行為在 $(|eV|/k_B T) > 1$ 依然存在 $(|eV|/k_B T)^{0.5}$ 的近似，且此現象已被先前的實驗[13]證實)，其斜率即為 $f_{2CK}(T)$ 值。 $f_{2CK}(T)$ 應對溫度有 \sqrt{T} 的依存關係，對 $f_{2CK}(T) - \sqrt{T}$ 做圖(圖 4-11)可以在其中觀察到一段線性區域，其對應的溫度列在表 4-5。比較表 4-5： $f_{2CK}(T) \propto \sqrt{T}$ 的溫區與表 4-2： $G(0, T) \propto -\sqrt{T}$ 的溫區，定量比較其溫區並不完全相同，但考慮實驗及數據處理上的誤差，其結果是合理的。對 $f_{2CK}(T) - \sqrt{T}$ 做線性擬合得到的斜率即對應到(4.2)中的 b_1 ，將所得到的 b_1 值帶回(4.2)中可以模擬出其低偏壓之行為，如圖 4-10(a)藍色虛線所示。

由理論的章節我們知道在 NFL 與 FL 的相，其 $G_{even}(V, T)$ 應遵守不同的 scaling law，為了驗證接點樣品在中溫區域確實為單純 NFL 的行為，我們對中溫區域的數據做 1CK(FL) scaling，藉此排除 1CK(FL) 的可能性。在先前理論部份有提到在 1CK-SCR 其 $G_{even}(V, T)$ 為會符合一 scaling form 的描述(式(2.17))，可以重整為[10]

$$\begin{aligned} \frac{G_{even,1CK}(0, T) - G_{even,1CK}(V, T)}{T^2} &= G(0, 0) c_T \left(\alpha - c_T \gamma \frac{T^2}{T_K^4} \right) \times \left(\frac{eV}{k_B T} \right)^2 \\ &= f_{1CK}(T) \times \left(\frac{eV}{k_B T} \right)^2 \quad \text{for } (V, T) \ll T_K, \quad (4.4) \end{aligned}$$

其中 α 、 γ 為普適常數，而 $G(0, 0)$ 、 c_T 與 T_K 在同一個樣品中是固定的。上式中我們可以知道 $f_{1CK}(T)$ 為一個溫度的函數，但當在 SCR 極限下 ($(V, T) \ll T_K$)，函數中 $T^2/T_K^4 \ll 1$ ，因此 $f_{1CK}(T) \approx f_{1CK} \approx G(0, 0) c_T \alpha$ (在我們的接點樣品中，中溫區域的溫度區間約為 8 到 18 K， $T_K \sim 30-40$ K， $c_T \sim 3$ ，由理論計算 $\alpha \approx 0.15$ [26, 32]，由實驗結果 $\gamma \approx 0.1$ [33]、 0.5 [22] $\approx 10^{-1}$ ，估計 $\{c_T \gamma (T^2/T_K^4) \sim 10^{-4}\} \ll (\alpha \approx 0.15)$ ，因此可忽略)，對同一個樣品而言近似為常數。我們將中溫區域的數據重整為 $[G_{even}(0, T) - G_{even}(V, T)]/T^2$ 對 $(eV/k_B T)^2$ 做圖，若此

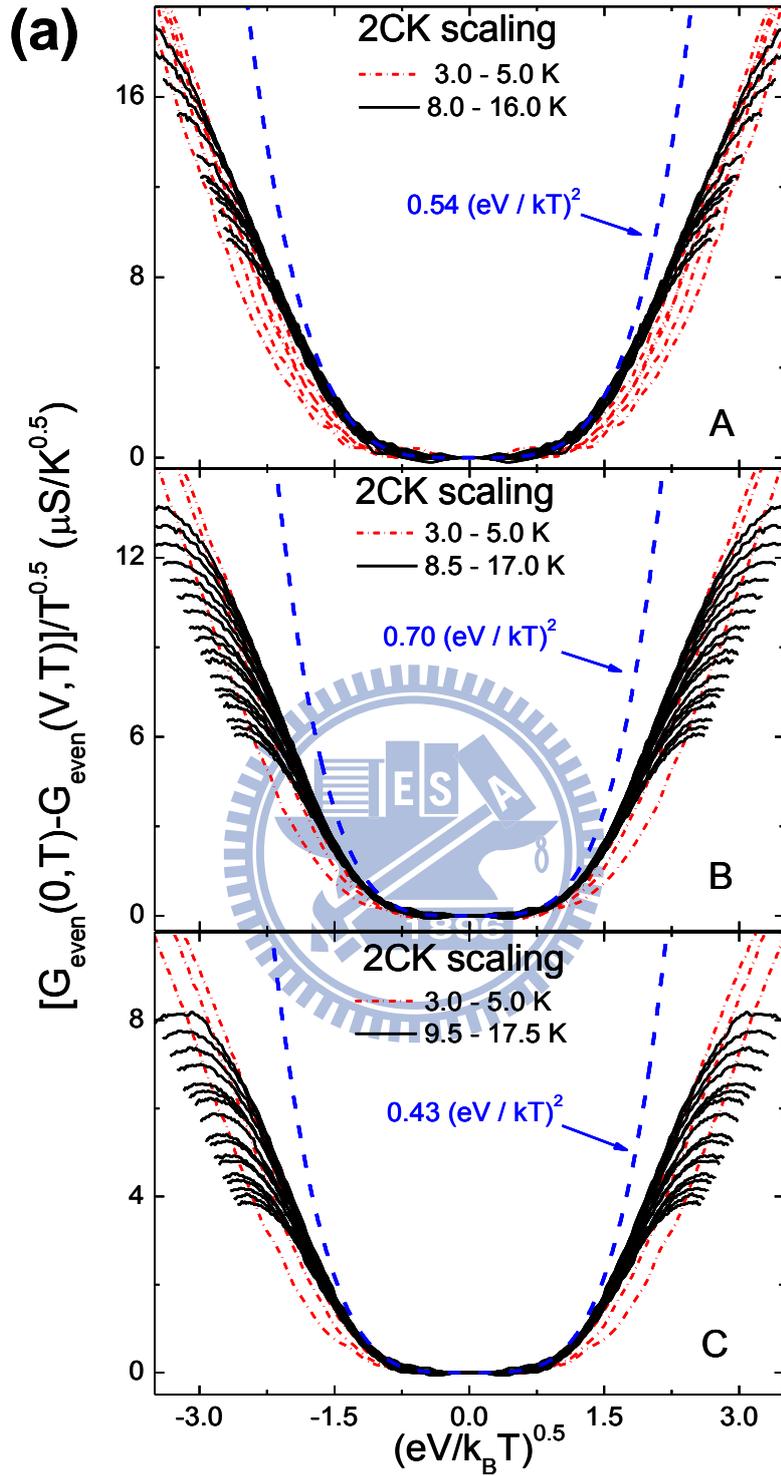


圖 4-10 2CK scaling。(a) 2CK scaling。圖中黑色實線為符合 $G(0,T) \propto -\sqrt{T}$ 溫區的數據，紅色細虛線為較低溫偏離 $-\sqrt{T}$ 依存的數據，藍色粗虛線為模擬低偏壓的行為。由圖中可觀察出在 $(eV/k_B T)^{0.5} \leq 2$ 的數據疊合在一曲線上。

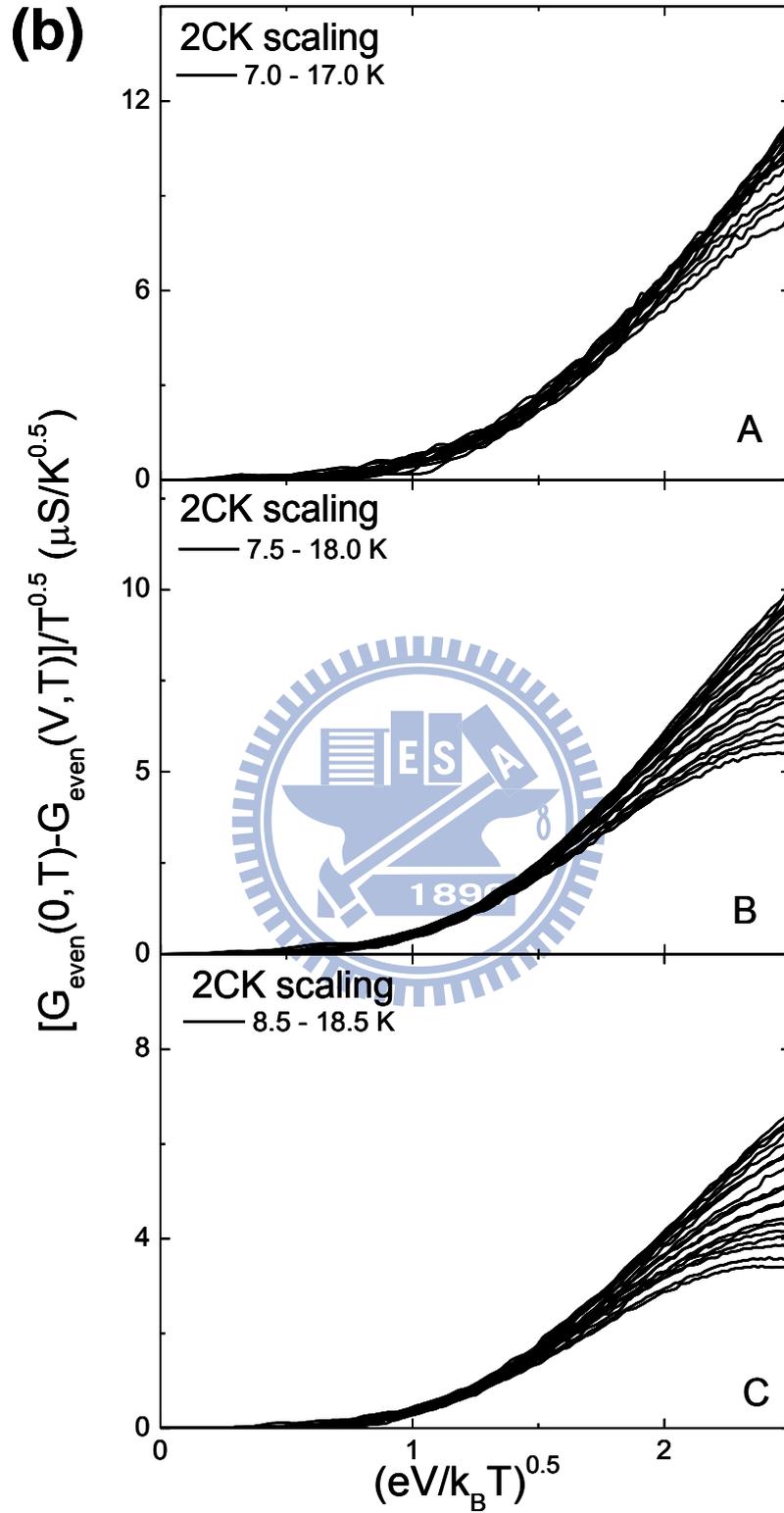


圖 4-10 2CK scaling。(b) 放大圖。另外增加中溫區域上下各 1 K 的數據。

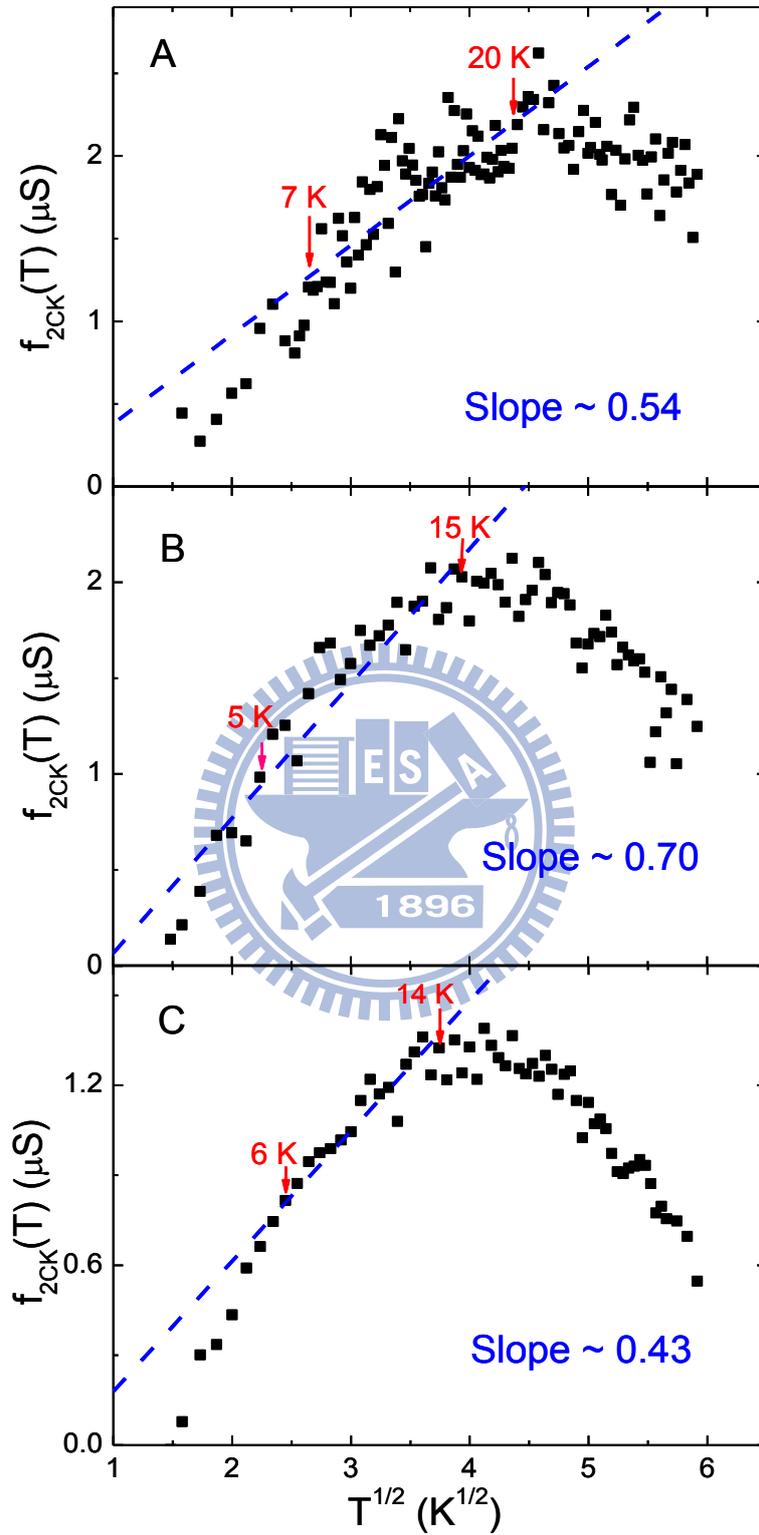


圖 4-11 $f_{2CK}(T)$ 對 \sqrt{T} 作圖。圖中存在一段溫區 $f_{2CK}(T)$ 對 \sqrt{T} 存在線性關係。對其作線性擬合，其斜率即對應式(4.2)中 b_1 的值。

溫區為 1CK(FL)的情況，其數據應疊合於一直線上，其分析如圖 4-12。在圖中可以觀察到數據曲線發散，並沒有疊合的現象，因此我們可以排除在中溫區域為 1CK(FL)的情況。

我們的接點樣品在中溫區域其 $G(0,T) \propto -\sqrt{T}$ ，且 $G_{even}(V,T)$ 的行為會疊合在 2CK 普適函數的曲線上，遵守 NFL scaling law，由分析結果結論在中溫區域我們的接點反映出 NFL 的行為其 $G_{even}(V,T)$ 為 \sqrt{T} 與 \sqrt{V} 的依存，但因在 2IK 模型中，經由近藤效應與雜質間反鐵磁耦合的競爭也會導致 NFL 的行為，且 2CK 與 2IK 模型 $G_{even}(V,T)$ 的 scaling form 是相同的[8]，因此，無法單純由 scaling 的結果去歸納符合我們接點樣品的模型是 2IK 或是 2CK 模型，這部份我們會在 4-5 節討論。

表 4-5 $f_{2CK}(T) \propto \sqrt{T}$ 的溫度區間與由擬合結果得到參數 b_1 的值。

樣品編號	$f_{2CK}(T) \propto \sqrt{T}$	b_1
A	7 – 20 K	0.54
B	5 – 15 K	0.70
C	16 – 14 K	0.43

4-3-3 低溫區域數據之討論

在表 4-2 中 T~3-10 K 接點樣品的 $G(0,T) \propto -T^2$ ，我們知道在 1CK-SCR 的區域其 $G(0,T)$ 會出現此依存，其對應到 FL 理論預測的行為。我們在先前理論有提到，1CK 近藤效應的電導行為可以由 Kondo empirical form 完全描述，我們將 Kondo empirical form 對我們的接點樣品的 $G(0,T)$ 擬合。但由擬合模擬結果(圖 4-13)可以得到我們的數據並不符合 Kondo empirical form 的描述，尤其在低溫部份實驗上的數據在溫度低於 T_m 後 $G(0,T)$ 會隨溫度降低而下降，已經嚴重偏離 1CK-SCR 對應到 FL 理論造成 $G(0,T)$ 以 $-T^2$ 的形式飽和，並且，數據中 $G(0,T)$ 為 $-T^2$ 依存之 $G_{even}(V,T)$ 並不符合 1CK(FL) scaling form 的描述(圖 4-14)。所以我們結論這裡所觀察到的 $G(0,T) \propto -T^2$ 只是 $G(0,T)$ 由上升轉換至飽和之間的一段過渡區域，並非對應到 FL 的行為。

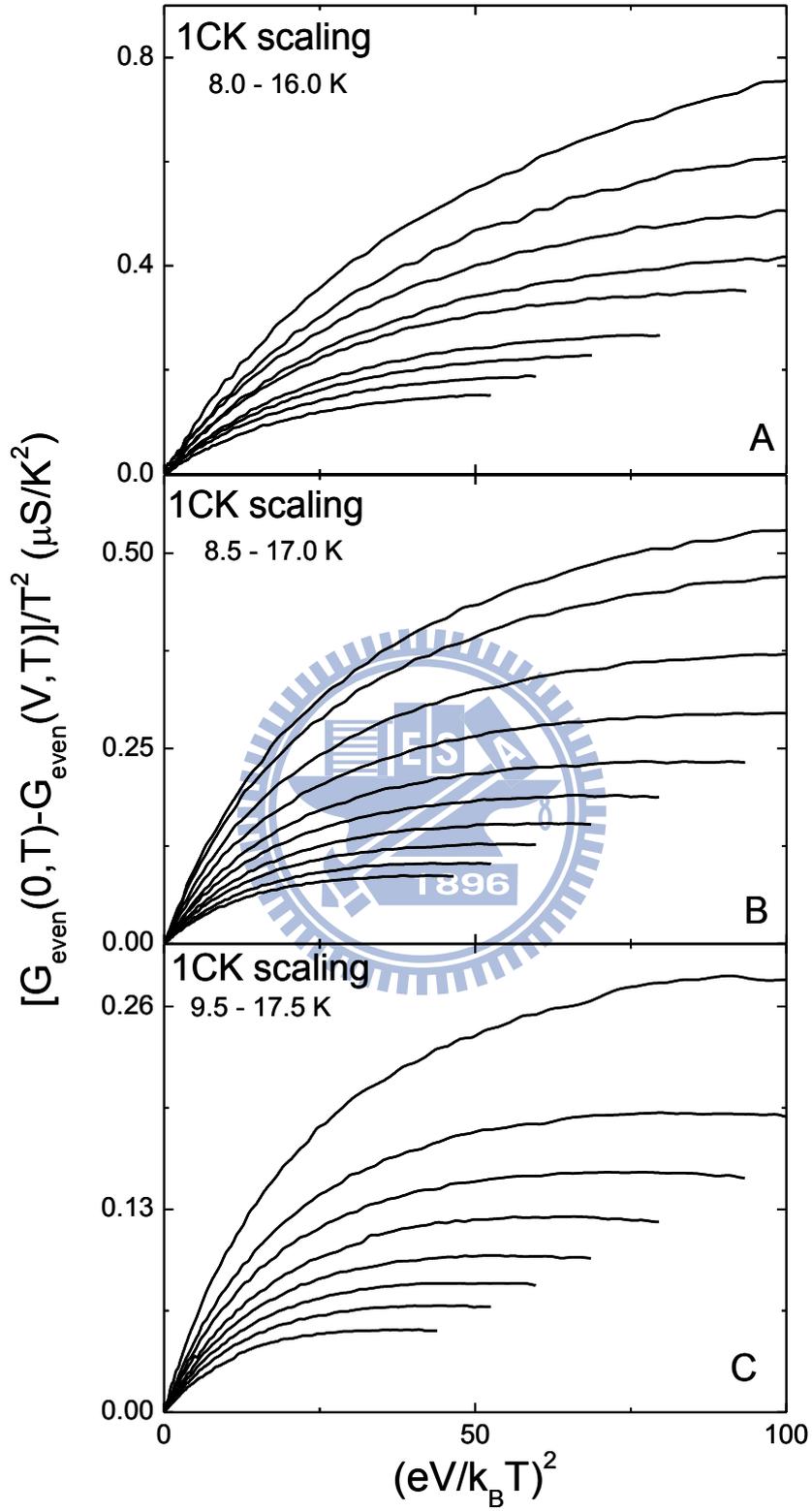


圖 4-12 中溫區域 1CK scaling 分析。由圖中可觀察出其 $G_{\text{even}}(V,T)$ 並沒有疊合於一曲線上。

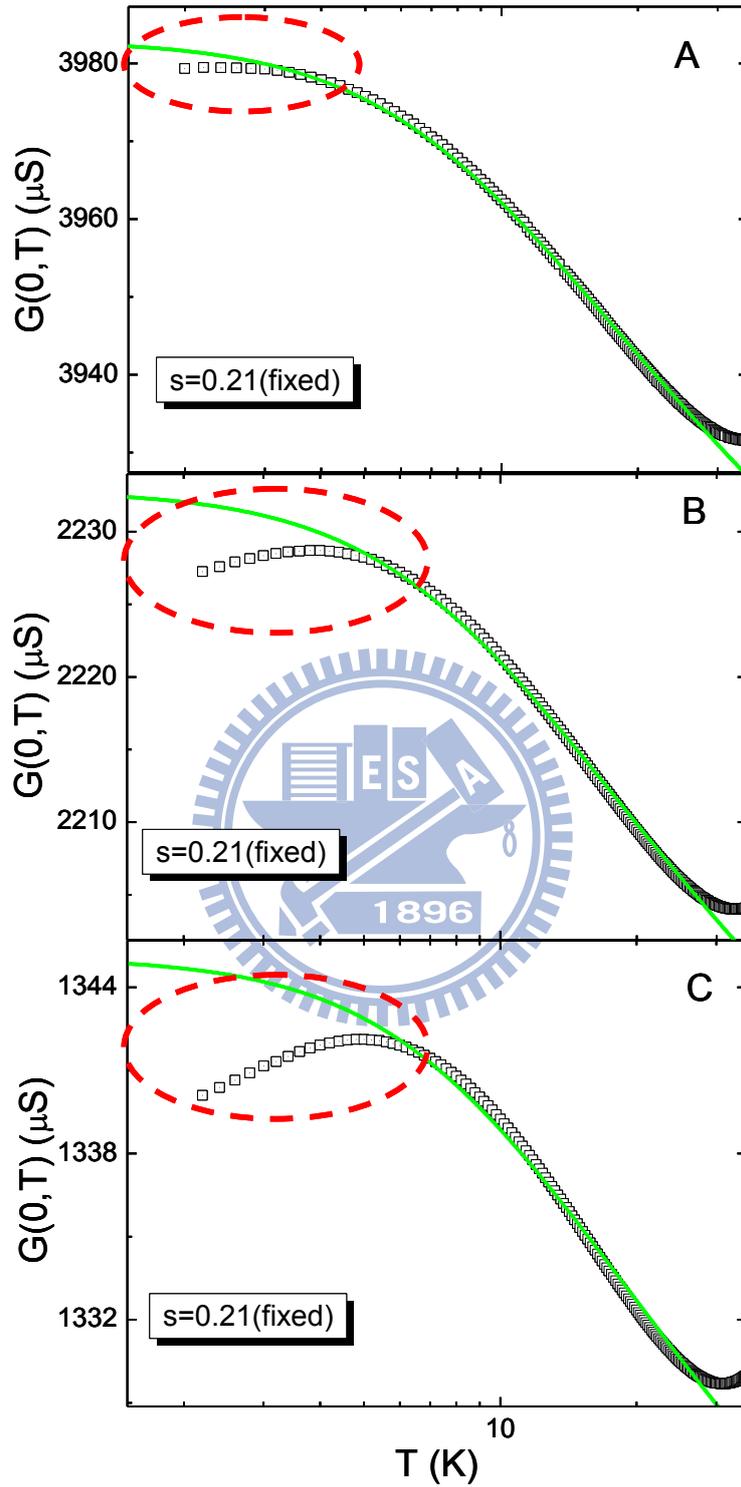


圖 4-13 Kondo empirical form 對 $G(0, T)$ 擬合之結果。由圖中可觀察出其擬合的結果並不好(尤其在低溫區域)，說明樣品的 $G(0, T)$ 行為不能用 Kondo empirical form 來描述。

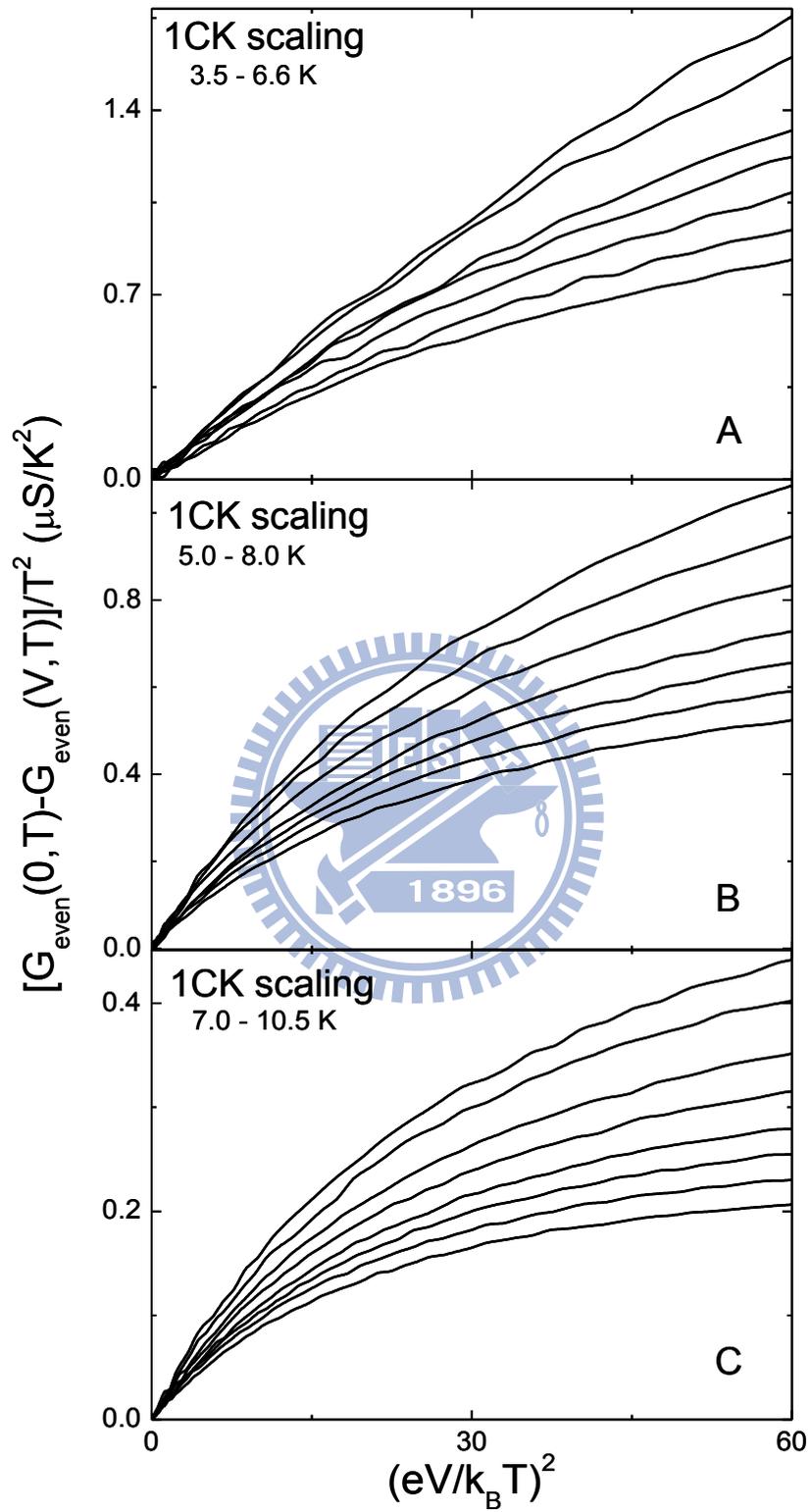


圖 4-14 低溫區域 1CK scaling 分析。由圖中可觀察出其 $G_{\text{even}}(V, T)$ 並沒有疊合於一曲線上。

4-4 外加磁場下的對稱項微分電導 $G_{even}(V, T, B)$ 行為之分析

接下來討論穿隧接點在外加磁場環境下量測的微分電導數據。只要磁場大於某一值後，即可抑制鋁電極的超導，因此量測溫度就不再受超導影響的限制，由之前實驗的經驗只要磁場大於 0.5 T 即可完全抑制鋁的超導。因此我們的磁場量測範圍選擇為 1-4 T，外加磁場方向為垂直於樣品基板(即與穿隧電流方向平行)。

我們在 He^3 低溫致冷系統的基溫 ~ 0.25 K 固定磁場 ($B=1-4$ T，間隔 0.5 T) 量測其有限偏壓之微分電導 $G(V, T, B)$ ，發現在零偏壓附近會出現明顯的谷(dip)(在零偏壓附近一小偏壓微分電導會隨偏壓降低而下降，最小微分電導值在零偏壓的地方，即原本的進藤峰(單峰)分裂成兩峰)，且谷會隨著磁場增加而愈寬愈深。跟之前一樣我們對數據扣除背景電導後做對稱項處理得到 $G_{even}(V, T, B)$ ，如圖 4-15，由圖中可以觀察出近藤峰對外加磁場的分裂情況。將不同外加磁場下 $G_{even}(V, T, B)$ 分裂的兩峰所對應的正負偏壓 ($V_{\max,+}$ 、 $V_{\max,-}$) 取出，定義其分裂能量為 $\delta(B) \equiv \left(|V_{\max,+}| + |V_{\max,-}| \right)_B$ ，對外加磁場 B 做圖，如圖 4-16。圖中可觀察 1-4 T 其 $\delta(B)$ 對 B 呈一線性關係，假設其分裂的原因為 Zeeman 分裂(Zeeman splitting)，其分裂的能量應為 $\delta(B) = 2 \times g \mu_B B$ ，即 $\delta(B)$ 對 B 應呈一線性關係，此符合我們在樣品中觀察到的現象。因為接點中的鋁電極會超導，所以我們無法量測到零磁場其微分電導在零偏壓附近是否會分裂，但我們可以由 1-4 T 的 $\delta(B)$ 對 B 的關係得到 g 值大約是 1.3-1.9，再將其外差到 0 T 得到 $\delta(0)$ 的值，結果整理至表 4-6。外差的結果發現 $\delta(0) \neq 0$ 且由圖 4-16 可知道其在 0-4 T 間不會有交點，意即近藤峰在 0.25 K 不外加磁場下會分裂，且隨著 B (1-4 T) 增加其 $\delta(B)$ 單調地增大。

另外，在外加 2 與 4 T 的磁場下我們量測穿隧接點的 $G(0, T)$ 行為，如圖 4-17。我們可以觀察到不同的外加磁場在高溫區域 $G(0, T)$ 行為差別並不大，對溫度都為 $-\log T$ 依存。由圖中可觀察到 $G_{\max}(0, T)$ 會隨著外加磁場增加而下降且對應的 T_m 隨著磁場增加而上升，溫度低於 T_m 後在 ~ 1 K 之前其會有 $\log T$ 的依存關係，在小於 1 K 之後其會以 T^2 之趨近飽和。

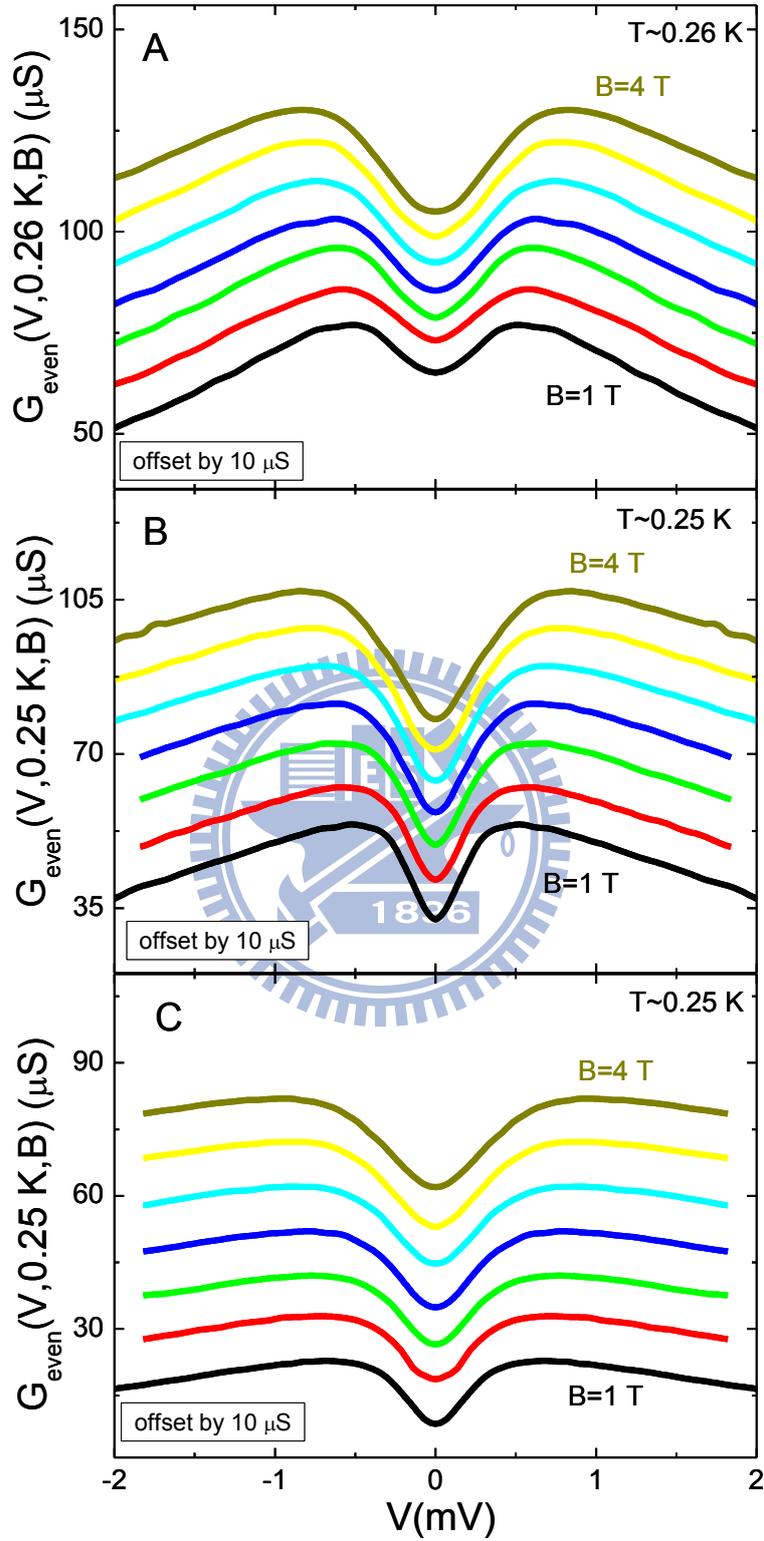


圖 4-15 $G_{\text{even}}(V, 0.25 \text{ K}, B) - V$ 圖。量測順序為外加磁場 4 到 1 T，間隔 0.5 T。為可清楚觀察 $\delta(B)$ 對 B 的變化，此數據的微分電導經過偏移 ($10 \mu\text{S}$) 處理。

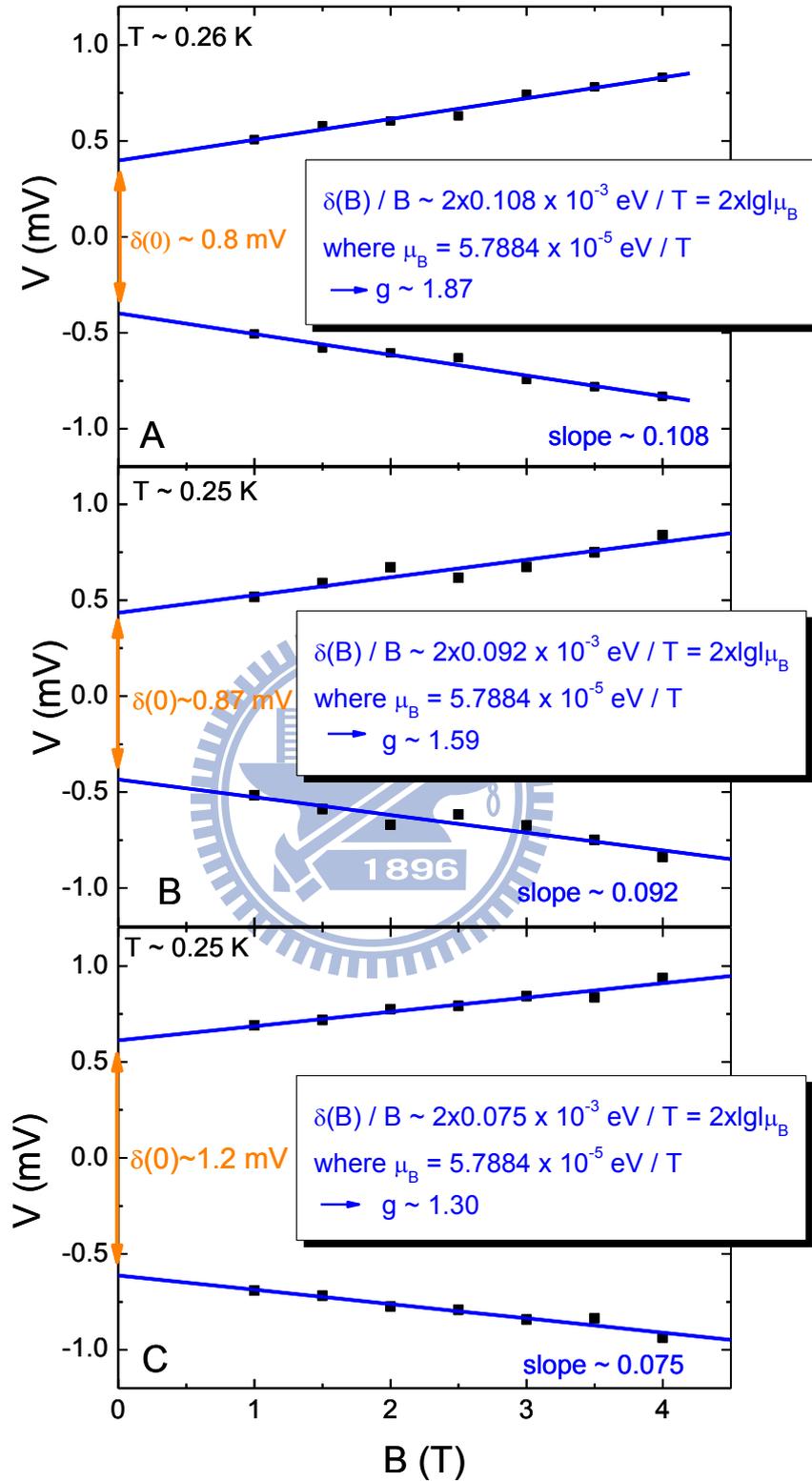


圖 4-16 $\delta(B)$ 對 B 的關係圖。圖中可由斜率得到 g 值，外插到 $0T$ 發現 $\delta(0) \neq 0$ ，且 $\delta(B)$ 隨著 B 增加單調地增大。

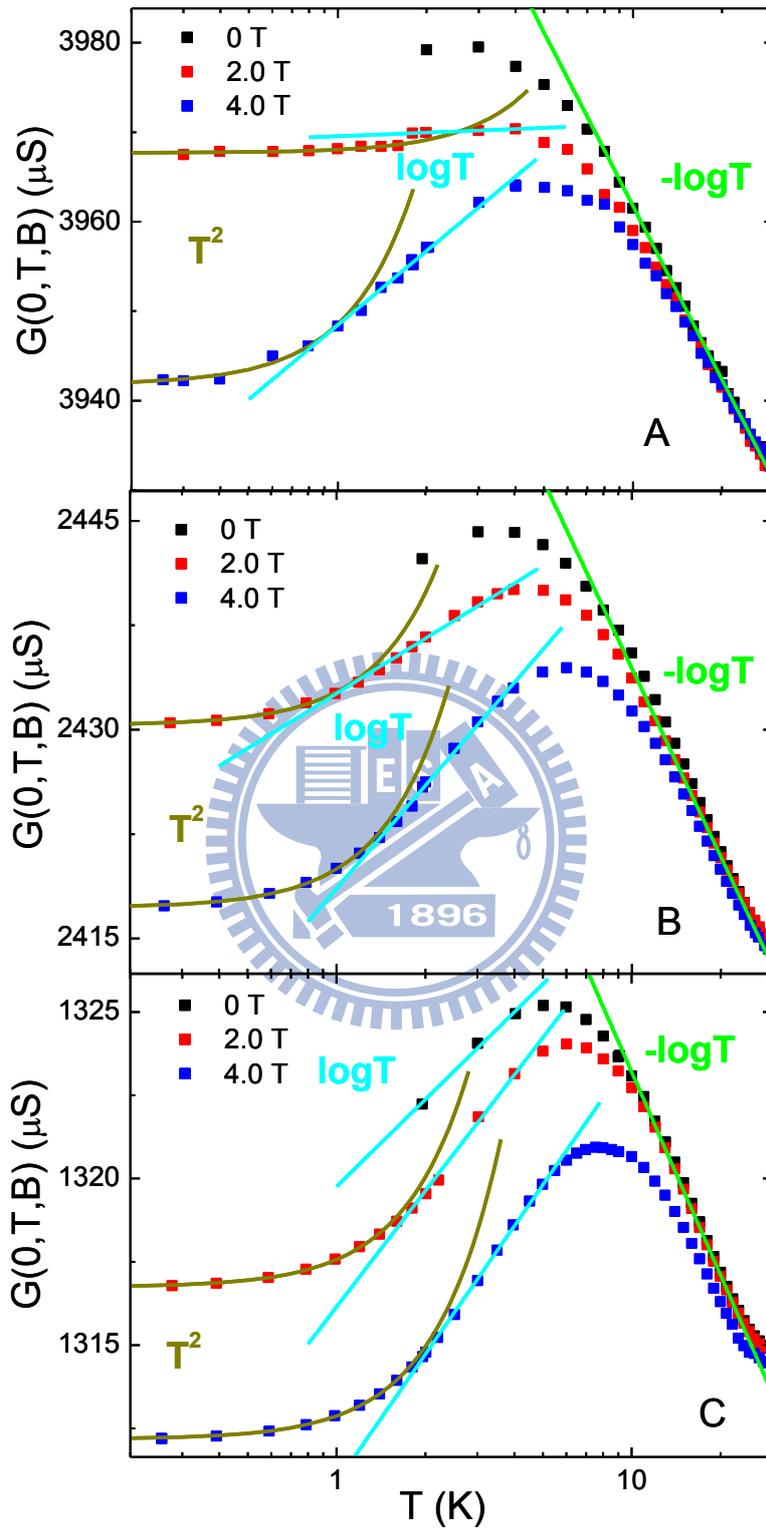


圖 4-17 不同磁場下之 $G(0, T) - T$ 圖。外加磁場 $B=0$ 、 2 、 4 T。

表 4-6 T~0.25 K 接點樣品的 g 與 $\delta(0)$ 。

樣品編號	g	$\delta(0)$ (mV)
A	1.87	0.80
B	1.59	0.87
C	1.30	1.20

4-5 討論

我們在 Al/AIO_x/Y 穿隧接點樣品中無外加磁場的環境下，高溫區域觀察到其 $G(0,T)$ 對溫度為 $-\log T$ 依存(圖 4-3(a))，且此溫區的 $G_{even}(V,T)$ 行為符合 Appelbaum 在 WCR 的近藤效應理論描述(圖 4-8、圖 4-9)，其機制為侷域雜質自旋與導電電子間在弱耦合區域的自旋交換作用，造成其電導以對數形式上升。在中溫區域我們觀察到其 $G(0,T)$ 對溫度為 $-\sqrt{T}$ 依存(圖 4-3(b))，且 $G_{even}(V,T)$ 的行為會疊合於 2CK 普適函數之曲線上(圖 4-10、圖 4-11)，顯露出 NFL 的行為。在低溫區域 $T < T_m$ ， $G(0,T)$ 隨著溫度降低而下降(圖 4-3(d))。

在我們的樣品中，中溫區域為什麼會顯露出 NFL 的行為造成微分電導為 \sqrt{T} 與 \sqrt{V} 的修正？在我們的樣品中，兩電極(Al 與 Y 電極)是會相互穿隧的，因此兩電極只可以視為同一個電子庫，所以不會有兩個獨立電子庫提供兩種獨立的導電電子競爭地去屏蔽一個雜質自旋的情況發生，因此其並非 2CK 模型可以解釋的[10]。一個可能為二能級系統(two level system; TLS)所導致的 2CK [9]，我們知道在樣品製作時，在蒸鍍 Y 電極時可能會有 Y 原子擴散進入 AIO_x/Y 介面造成其在 AIO_x 層形成一動態缺陷(dynamic defect)座落於一對稱的雙位能井而導致 TLS，考慮一 Y 原子在此雙位能井中穿隧，其可視為系統中存在一 pseudo spin，並且考慮其與導電電子交互作用，導電電子的自旋可等效提供 channel indices，因此系統可對映至 2CK，導致其顯露出 NFL 的行為。但此類動態缺陷造成的 TLS 只要對其熱處理即可破壞掉其原本的狀態，本實驗室葉勝玄學長在類似的系統中(Al/AIO_x/Sc)觀察到 2CK 行為，他對穿隧接點作真空熱退火處理($P \sim 10^{-5}$ torr, 100 °C,

1 hr)，經此處理原本的 TLS 應已被破壞，但其依舊觀察到一段 $G(0,T) \propto -\sqrt{T}$ (圖 1-1(a))[13]，因此排除此現象為 TLS 所導致，而我的樣品與他的相似，因此也可以排除此可能性。另一個可能為 2IK 模型[7, 8]中考慮近藤效應(特徵能量 T_K)與雜質間等效反鐵磁耦合(特徵能量 K)的競爭，在 $T=0$ 時其會存在一 quantum critical point $(K/T_K)_C$ ，分離近藤屏蔽相(Kondo screened phase; $(K/T_K) < (K/T_K)_C$)與侷域自旋單重相(local spin singlet phase; $(K/T_K) > (K/T_K)_C$)的基態，在 $(K/T_K)_C$ 其會顯露出 NFL 的行為，其 $G(0,T)$ 為 \sqrt{T} 的修正，且 $G_{even}(V,T)$ 的 scaling 的性質會與 2CK scaling 相同。根據上面的討論，我們認為最可能可以解釋樣品微分電導行為的為 2IK 模型之劇本。在低溫下 $G(0,T)$ 反應一非單調行為，其中存在一 T_m (對應 $G_{max}(0,T)$ 之溫度)，依據 2IK 模型的解釋，我們可以歸納在溫度低於 T_m 後雜質間開始傾向形成單重態，此會抑制近藤效應導致微分電導下降。

歸納我們在 Al/AIO_x/Y 穿隧接點由 $G(0,T)$ 與 $G_{even}(V,T)$ 觀察到的現象，在接點中的雜質對電子庫反鐵磁耦合產生近藤效應(特徵能量尺度 T_K)，且雜質間存在一等效的反鐵磁耦合(特徵能量尺度 K)與近藤效應競爭。在高溫區域，雜質自旋等效各自獨立地對導電電子發生弱耦合的近藤效應，造成微分電導以對數形式上升。在中溫區域，因為近藤效應與雜質間的等效反鐵磁耦合之競爭導致其顯露出 NFL 的行為，微分電導為 \sqrt{T} 與 \sqrt{V} 的修正。在低溫區域，因為觀察到在此區域 $G(0,T)$ 會隨著溫度降低而下降，並加上中溫區域分析的結果，我們認為在低溫區域雜質間因反鐵磁耦合的關係開始形成自旋單重態，系統之基態落在侷域自旋單重相(物理機制的示意圖為圖 4-18)，對照相圖(圖 4-19)我們的樣品落在 $(K/T_K) > (K/T_K)_C$ 的區域。

在外加磁場環境下的微分電導，我們觀察到近藤峰分裂的現象(B 的範圍為 1-4 T，因鋁會超導的關係，我們無法量測低磁場下的數據)，我們認為其對應到 Zeeman splitting，即分裂大小 $\delta(B)$ 對外加磁場 B 的關係為 $\delta(B) = 2 \times g\mu_B B$ ，由外差的結果得到 $\delta(0) \neq 0$ 且 $\delta(B)$ 對 B 為單調增加。先前的文獻[27]指出，觀察 $\delta(B)$ 對 B 的行為可以判斷雜質自旋間耦合的類型。若系統中等效可看成是存在兩自旋 1/2 的雜質，其會存在兩種

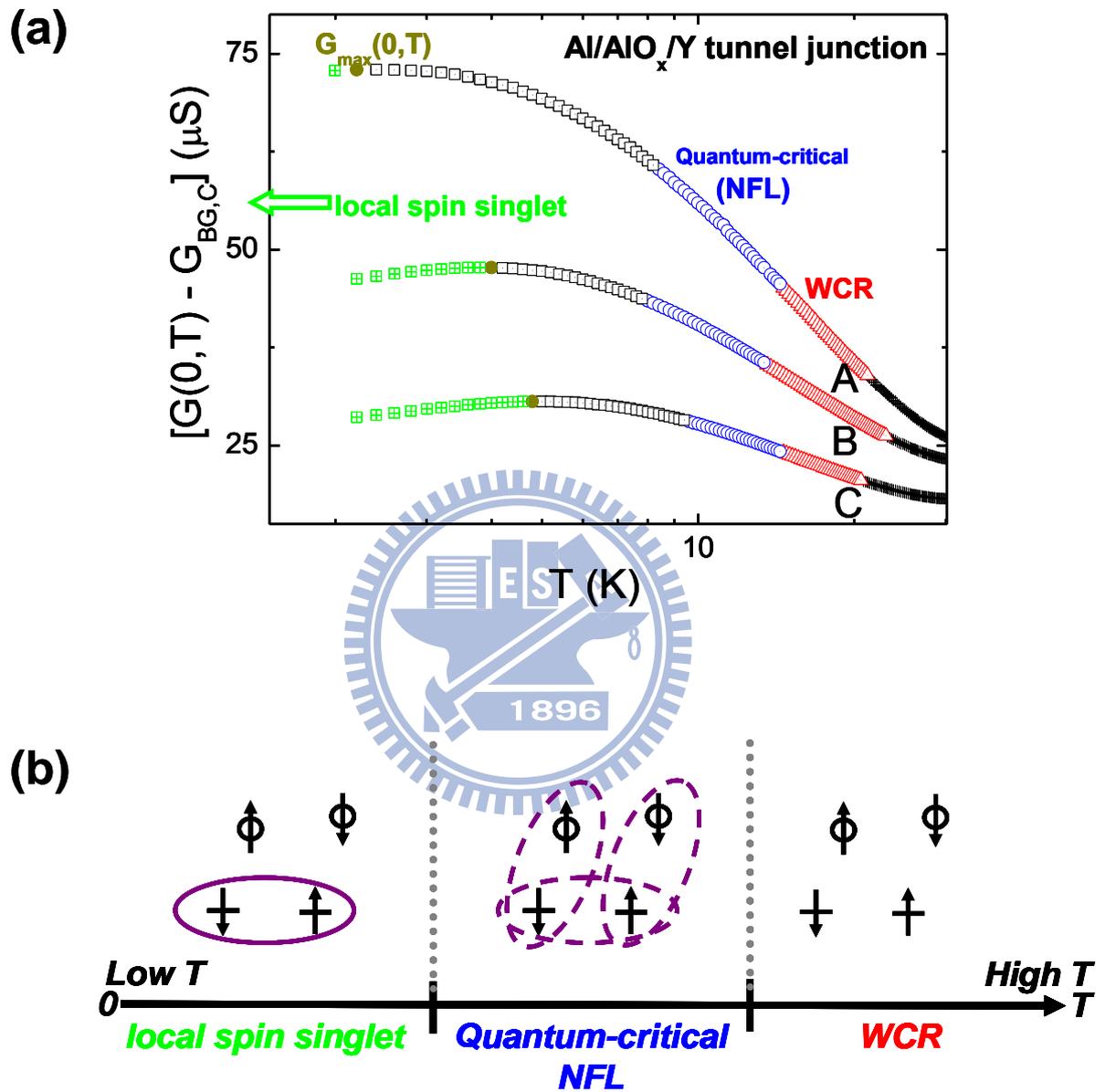


圖 4-18 小電阻接點樣品各溫區的物理機制整理。(a) 各溫區之物理機制，(b) 對應之物理圖像。

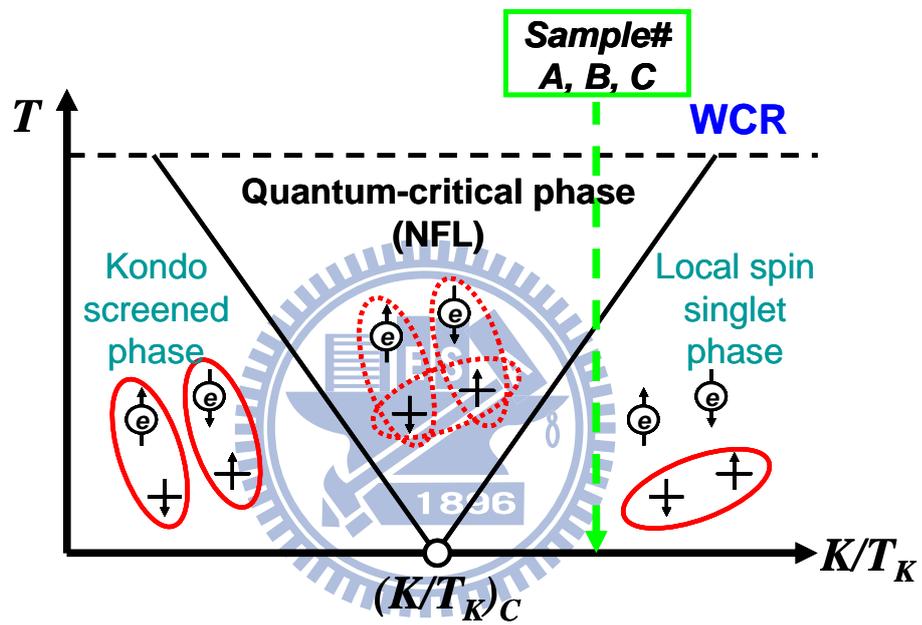


圖 4-19 小電阻接點樣品在相圖上座落的位置在相圖上座落的位置。

態，單重態 $|S, m_s\rangle = |0, 0\rangle$ 與三重態 $|1, -1\rangle$ 、 $|1, 0\rangle$ 、 $|1, 1\rangle$ ，在不外加磁場下三重態為簡併態，即其三個態都處在相同的能階。一旦外加磁場 B ，三重態的能階會分裂為 $g\mu_B B$ ，因此雜質間不同的耦合類型會導致不同的 $\delta(B)$ 對 B 的行為，圖 6-5：

(a) 當雜質間為反鐵磁耦合，其基態為單重態 $|0, 0\rangle$ ，在偏壓加至 $\delta/2$ 時會造成 singlet-triplet transition，因此其會存在一峰在偏壓等於 $\delta/2$ 的位置。在外加磁場時， $\delta(B)/2$ 代表 $|0, 0\rangle \rightarrow |1, -1\rangle$ transition 的能量，因此 $\delta(B)$ 會隨著 B 增加而先減小後再增大， $\delta(B)$ 對 B 為非單調行為，意即近藤峰在零磁場時會分裂成兩峰，隨著磁場增加其兩峰逐漸靠近合併成一峰，後隨磁場增加再分裂成兩峰。

(b) 當雜質間為鐵磁耦合，就如同前面所討論的，但此時基態為三重態，因此是對應到 $|1, -1\rangle \rightarrow |0, 0\rangle$ 的 transition，其隨著 B 增加 $\delta(B)$ 單調地增加，意即近藤峰隨著磁場增加只會分裂愈大，並不會有合併的現象。

依文獻[27]上的解釋對照我們的實驗數據，似乎指示在接點中的雜質間為鐵磁耦合，其基態為三重態。

我們先討論在接點中的雜質間是否可能存在鐵磁耦合的情況：文獻[28]指出，在 2IK 模型中雜質間的 RKKY 交互作用確實可以為鐵磁或反鐵磁性，其交互作用的類型(鐵磁或反鐵磁)由兩雜質間的等效距離決定(圖 6-6)。當兩雜質間距離很近時($k_F R \leq \sim 2.5$)，其 RKKY 交互作用會是鐵磁性的，隨著兩雜質間距離增加，其 RKKY 交互作用 I (或由前面理論章節定義之符號 K_{RKKY})會正負震盪，意即雜質間耦合類型隨著雜質之間距離增加週期性地變換鐵磁或反鐵磁性耦合。而在我們的接點樣品中，我們推測接點中存在未抑制的磁矩是因為在樣品製作時少量的 Y 原子($4d^1$)會座落或輕微擴散入 AlO_x/Y 介面。因此雜質之間的距離應會與 Y 和 AlO_x 的材料特性、Y 電極與 AlO_x 絕緣層的製成條件有關。材料特性是固定的，而我們每次的製成條件都控制在一定範圍內(第三章)，因此不同接點樣品 Y 原子間的距離差距並不預期會太大，所以不同樣品內雜質自旋間的距離可視為相同。對照圖 6-6，若雜質間的距離很近或者剛好落在鐵磁性交互作用的範圍，我

們確實有可能三個樣品都反映出鐵磁性耦合。但是，對照先前我們在實驗數據中之觀察，在中溫區域的 $G_{even}(V,T)$ 為 \sqrt{V} 與 \sqrt{T} 的修正，分析與討論後我們認為其應為近藤效應與雜質間反鐵磁耦合之競爭造成其顯露 NFL 行為的結果，即我們的樣品反映一雜質間存在反鐵磁耦合之 2IK 模型的物理架構。在這樣的模型架構下，其基態不論是近藤屏蔽相或是侷域自旋單重相都為單重基態，這與外加磁場數據觀察到的現象不一致。並且，就目前所理解，2IK 模型中若雜質間為鐵磁耦合，其基態應該只可能為近藤相，在有限溫度並不預期其微分電導會有 \sqrt{T} 與 \sqrt{V} 的修正反映 NFL 行為。

那麼，我們是否有可能在雜質自旋形成單重態的情況下，其實驗量測之 Zeeman 分裂結果為 $\delta(B)$ 對 B 為單調增加的趨勢？一個初步的想法為我們的有限偏壓峰對應到三重態之 $|1,-1\rangle$ ，但因為某些原因造成系統存在一內在磁場 B_{int} ，導致 Zeeman 分裂的實驗數據為反映 B_{int} 疊加外加磁場 B_{ext} 的 $\delta(B)$ (示意圖 4-20(a))。若是如此，則樣品 A、B 與 C 的內在磁場 B_{int} 等效分別需大於 4、5 與 8 T 才有可能造成我們觀察到的現象。另一個可能為，若單純由數據上看，在基態為單重態的情況下，我們的峰似乎是對應到三重態之 $|1,1\rangle$ (示意圖 4-20(b))，但若是如此，我們無法解釋為什麼卻無法由數據中觀察到 $|1,0\rangle$ 與 $|1,-1\rangle$ 所對應的峰(原則上，若是由 singlet 躍遷至 triplet，在外加磁場下，有限偏壓應觀察到 triplet 所對應的三個態，即應該在 $\pm V$ 共有六個峰，但在實驗上[11, 27]，卻只會量測到兩個峰，由峰表現出的 Zeeman 分裂隨磁場的變化歸納此有限偏壓峰應對應 triplet $|1,-1\rangle$ 的態。在文獻中[11]指出觀察不到 $|1,0\rangle$ 與 $|1,1\rangle$ 所對應的峰可能是因為大偏壓造成 spin decoherence 所導致。反觀我們的情況，若我們認為可以觀察到三重態最高能量的態 ($|1,1\rangle$)，那麼直觀上應該也要能觀察到低能量的態 ($|1,0\rangle$ 與 $|1,-1\rangle$) 較為合理。)。關於我們接點樣品的 Zeeman 分裂行為，我們目前還無法了解其反映的物理機制，我們尚未能給定一個使其能與未外加磁場數據一致的解釋，這一部份還需要進一步的分析與討論。

另外，在大電阻穿隧接點樣品(樣品編號 D、E)中我們觀察不到近藤效應(圖 4-21)。由圖中(圖 4-21)可以觀察出其 $G(0,T)$ 隨溫度降低而下降的趨勢，且其 $G_{even}(V,T)$ 隨著偏壓降低而下降，呈現一谷，我們可以觀察到在 $V < \pm 30$ mV 其 $G_{even}(V,T)$ 的谷會隨著溫度降低而愈深。圖 4-22 為大電阻穿隧接點樣品在外加磁場下的數據，由圖中可估計樣品 D、E 在外加磁場 1-4 T 間 $G(0,T)$ 的變化量分別為 1% 與 2%。

最後，我們比較樣品 A、B 與 C 之間的差異。由表 4-1 可以知道樣品的室溫接點電阻 $R_j(300\text{ K})$ 隨樣品編號順序(A、B、C)依序增大(分別約為 170、310、490 Ω)，且由表 4-2 其 T_m 依樣品編號順序依序增加(分別約為 2.2、4.0、4.8 K)，我們討論可能造成此現象的原因(示意如圖 4-23)：直觀地， $R_j(300\text{ K})$ 的大小主要受 AlO_x 層厚度 L 所支配，相對上 $R_j(300\text{ K})$ 較大代表 L 較大，且如同前面已敘述過 Y 原子($4d^1$)只會座落或輕微擴散入 AlO_x/Y 的介面，因此 Y 原子與 Al 電極的距離 $\approx L$ 。我們可以想像在樣品中的近藤耦合強度會與雜質至電極的距離有關，因此 L 愈大 T_K 愈小(即 $R_j(300\text{ K})$ 愈大 T_K 愈小，符合表 4-4 結果)，而雜質間反鐵磁耦合的強度會與雜質間的距離有關，前已敘述在不同的樣品中雜質間距離差距應不大，因此在不同樣品中 K 可視為固定。因此，在我們的接點系統中， $R_j(300\text{ K})$ 愈大代表 $[(K/T_K) - (K/T_K)_C]$ 愈大，對照相圖(圖 4-19)可以知道雜質會在愈高溫就開始傾向相互耦合形成單重態，因此導致 T_m 上升。另外，樣品 D、E 的 $R_j(300\text{ K})$ 很大(分別約為 2300、12700 Ω)，由上述解釋可以預期此類樣品 T_K 很小，因此近藤效應對微分電導的貢獻很小導致實驗上觀察不到。

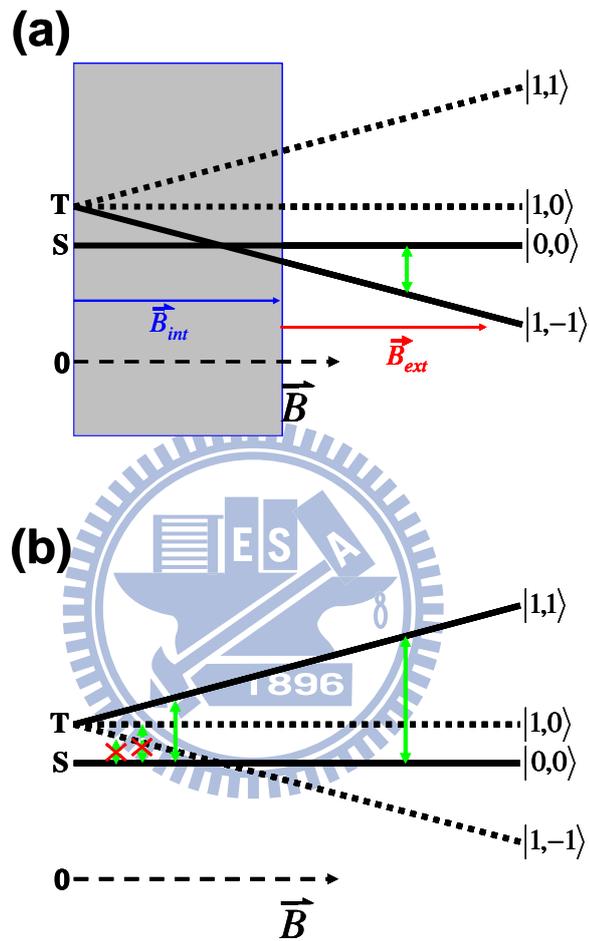


圖 4-20 Zeeman 分裂之實驗數據解釋之示意圖。(a) 有限偏壓峰對應 $|1,-1\rangle$ 之解釋示意圖。(b) 有限偏壓峰對應 $|1,1\rangle$ 之解釋示意圖。

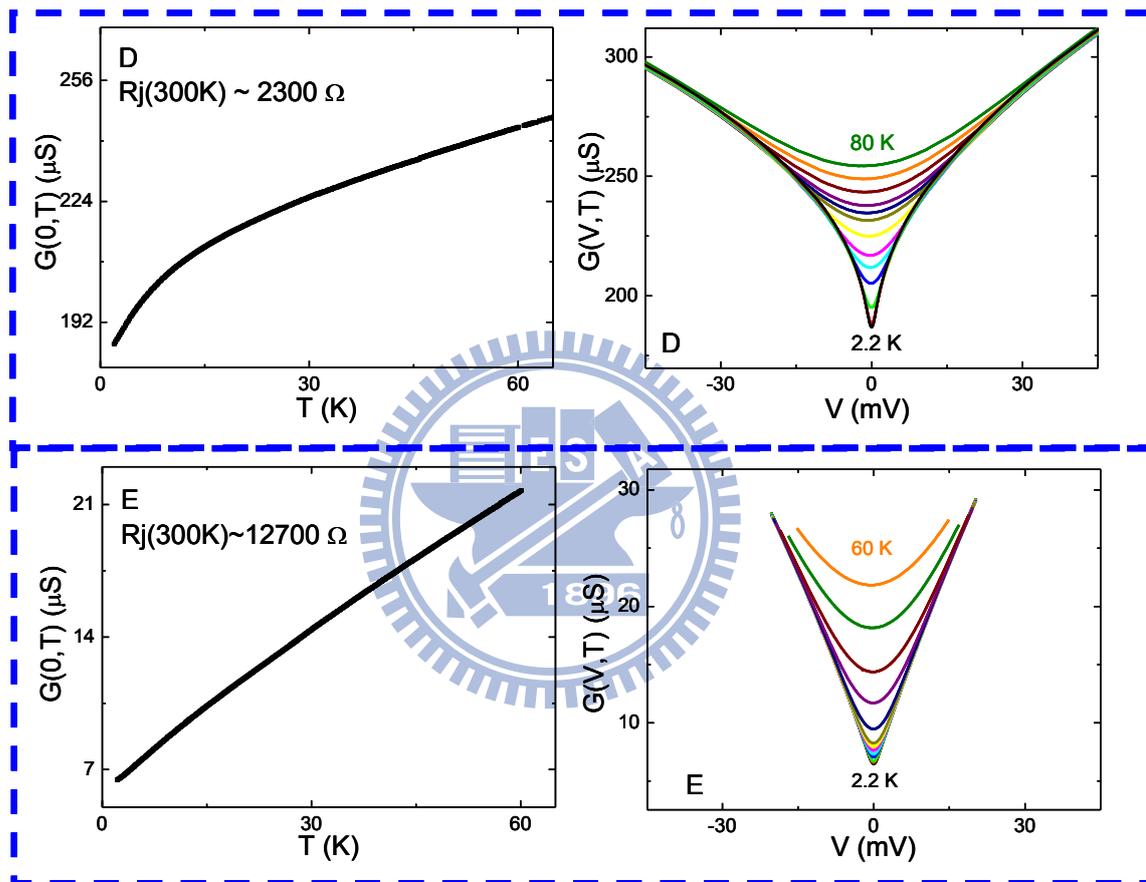


圖 4-21 大電阻穿隧接點樣品(樣品編號 D、E)之微分電導的行為。在此類樣品中觀察不到近藤效應。

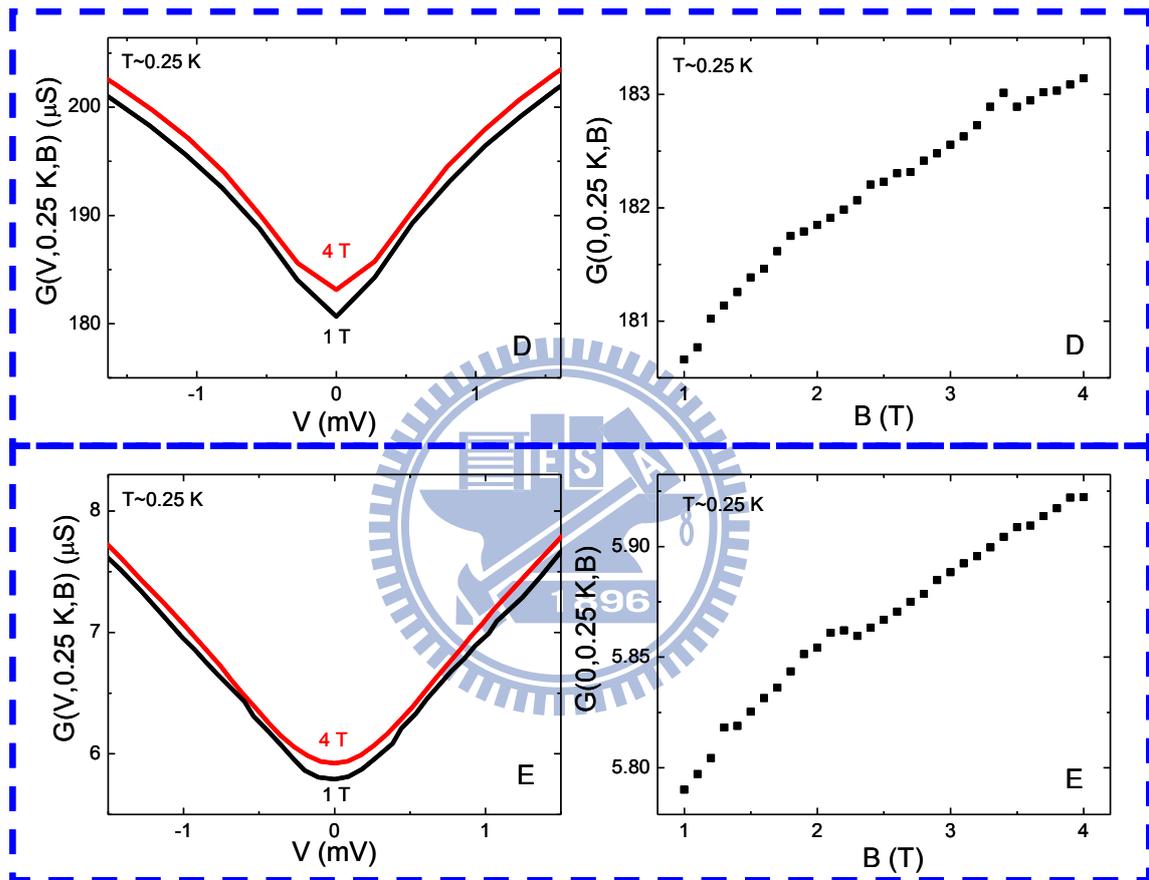


圖 4-22 外加磁場環境下大電阻穿隧接點樣品(樣品編號 D、E)樣品之微分電導的行為。
由右圖可知樣品 D、E 的零偏壓微分電導在 1-4 T 變化量分別約為 1% 與 2%。

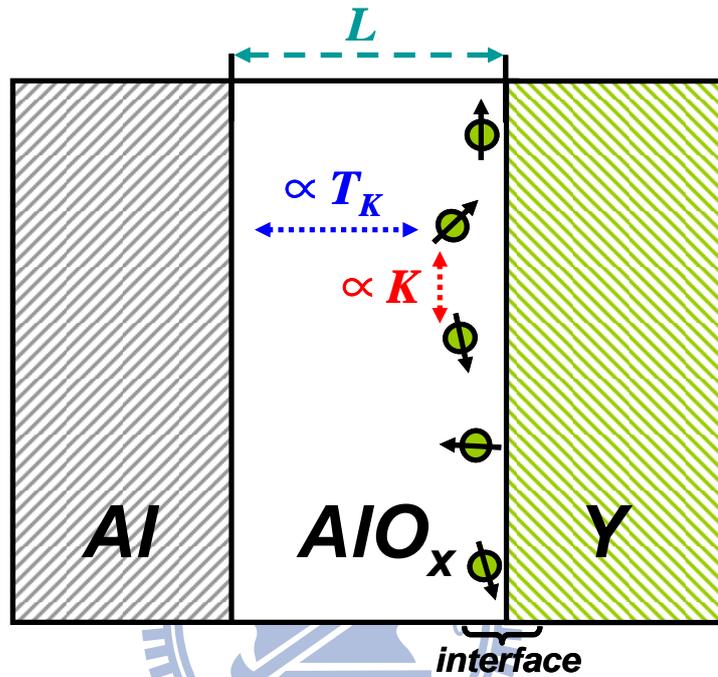


圖 4-23 穿隧接點氧化層厚度與雜質間距離對近藤效應的影響示意圖。圖中 T_K 為近藤溫度， K 為雜質間反鐵磁耦合強度， L 為 AlO_x 氧化層的厚度， L 增加會使室溫電阻 $R_j(300\text{ K})$ 增加。圖中 Y 雜質只會座落或輕微擴散入介面，因此雜質至 Al 電極的距離 $\approx L$ ，而雜質間的距離會與材料特性與製程條件有關，因此可歸納在我們的不同樣品中雜質間距離大約是固定的。雜質與電極的距離會影響樣品的近藤耦合強度，等效上 L 愈大 T_K 愈小，而雜質間的距離會影響 K ，因此不同樣品的 K 可視為固定。因此可以結論相對上 $R_j(300\text{ K})$ 愈大 (K/T_K) 愈大。

五、 結論

我們量測了五個 Al/AIO_x/Y 穿隧接點的低溫微分電導行為，在其中三個室溫電阻值較小的穿隧接點中觀察到近藤效應，其所對應的 $T_K \sim 30-40$ K。

在高溫區域，小電阻穿隧接點的微分電導行為符合 Appelbaum 的 WCR 近藤效應理論描述， $G_{even}(V, T)$ 以 $-\log T$ 與 $-\log|V|$ 的形式上升。在中溫區域，其 $G(0, T) \propto -\sqrt{T}$ ，且 $G_{even}(V, T)$ 遵守 NFL 的 scaling law。在低溫區域，我們觀察到其 $G(0, T)$ 隨溫度降低而下降，由高溫至低溫區域其 $G(0, T)$ 對溫度呈現一非單調行為。歸納上述實驗上所觀察到的結果我們認為在中溫區域，接點樣品所顯露出的 NFL 行為是由於近藤效應與雜質間反鐵磁耦合之競爭所導致，即我們的系統反映一 2IK 模型的架構。由低溫區域接點 $G(0, T)$ 的行為判斷我們的系統其基態落在 2IK 相圖中的侷域自旋單重相，意即處在基態時雜質間相互反鐵磁耦合形成單重態。但由量測 Zeeman 分裂隨磁場變化的數據，其分析結果並不如我們所預期，我們目前還無法給定一個合理的解釋，這部分的數據尚需進一步的分析與討論。

另外，歸納在不同室溫電阻大小的穿隧接點中觀察到的微分電導行為(包含大電阻與小電阻接點)，我們認為因氧化層厚度之差異導致雜質與鋁電極距離的不同造成小電阻穿隧接點之間微分電導行為的差異(即導致 (K/T_K) 不同)，並且因相同的原因導致在大電阻穿隧接點中實驗上觀察不到近藤效應。

六、 附錄

本章節收錄一些在第四章部分有提及，與我們數據處理與解釋相關的背景理論與參考文獻說明，以及部分我們所量測的數據。

數據部分：

圖 6-1 反對稱項微分電導 $G_{odd}(V, T)$ 之數據。

圖 6-2 Al/AIO_x/Al 穿隧接點樣品之微分電導數據。

圖 6-3 樣品編號 D、E 之 $G(V, T) - \sqrt{V}$ 圖。

背景理論與參考文獻說明：

圖 6-4 超導能隙示意圖。[29]

圖 6-5 雜質間不同耦合類型其微分電導對磁場變化的行為。[27]

圖 6-6 雜質間的距離與 RKKY 交互作用類型的關係。[28]

圖 6-7 一般方型位壘穿隧電流之理論計算。[30]

圖 6-8 BDR 模型。[31]



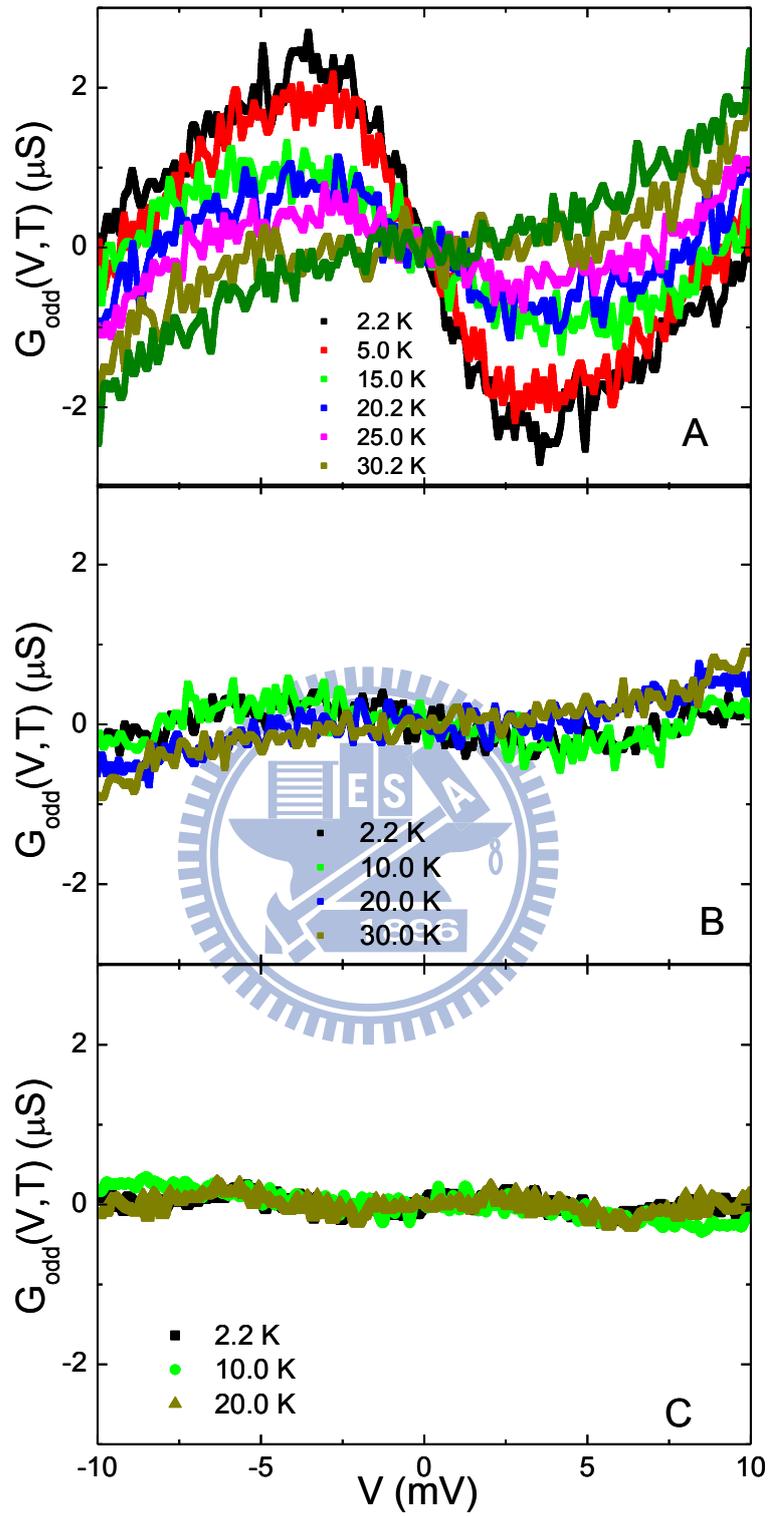


圖 6-1 反對稱項微分電導 $G_{\text{odd}}(V, T)$ 之數據。

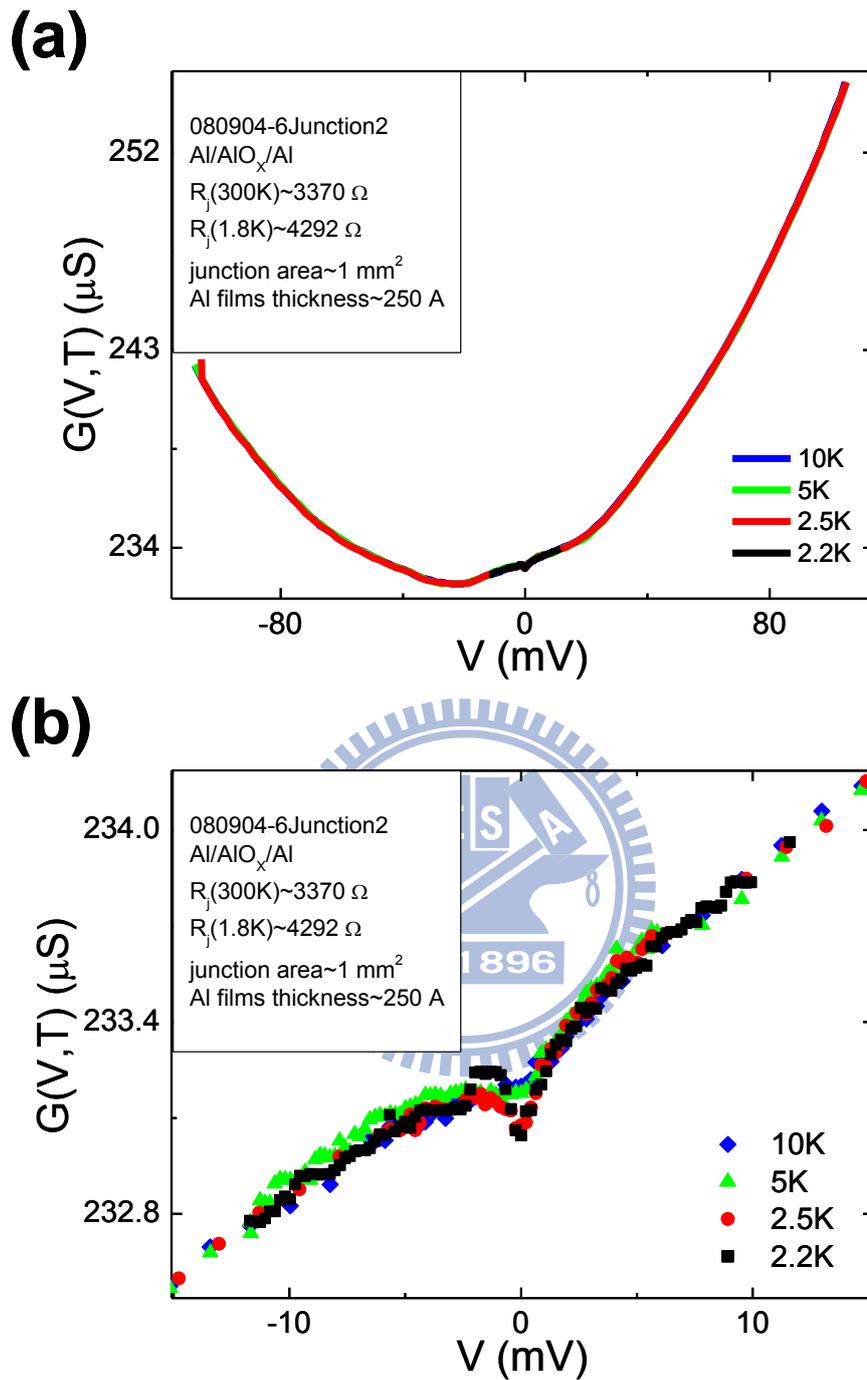


圖 6-2 Al/AIO_x/Al 穿隧接點樣品之微分電導數據。(a) 大偏壓行為。(b) 小偏壓行為。
 對溫度有明顯變化的範圍約在 $|V| \approx 1\text{mV}$ ，由圖(b)可看到在零偏壓附近存在一
 谷，在 2.2-10 K 其變化量約為 0.06 %。

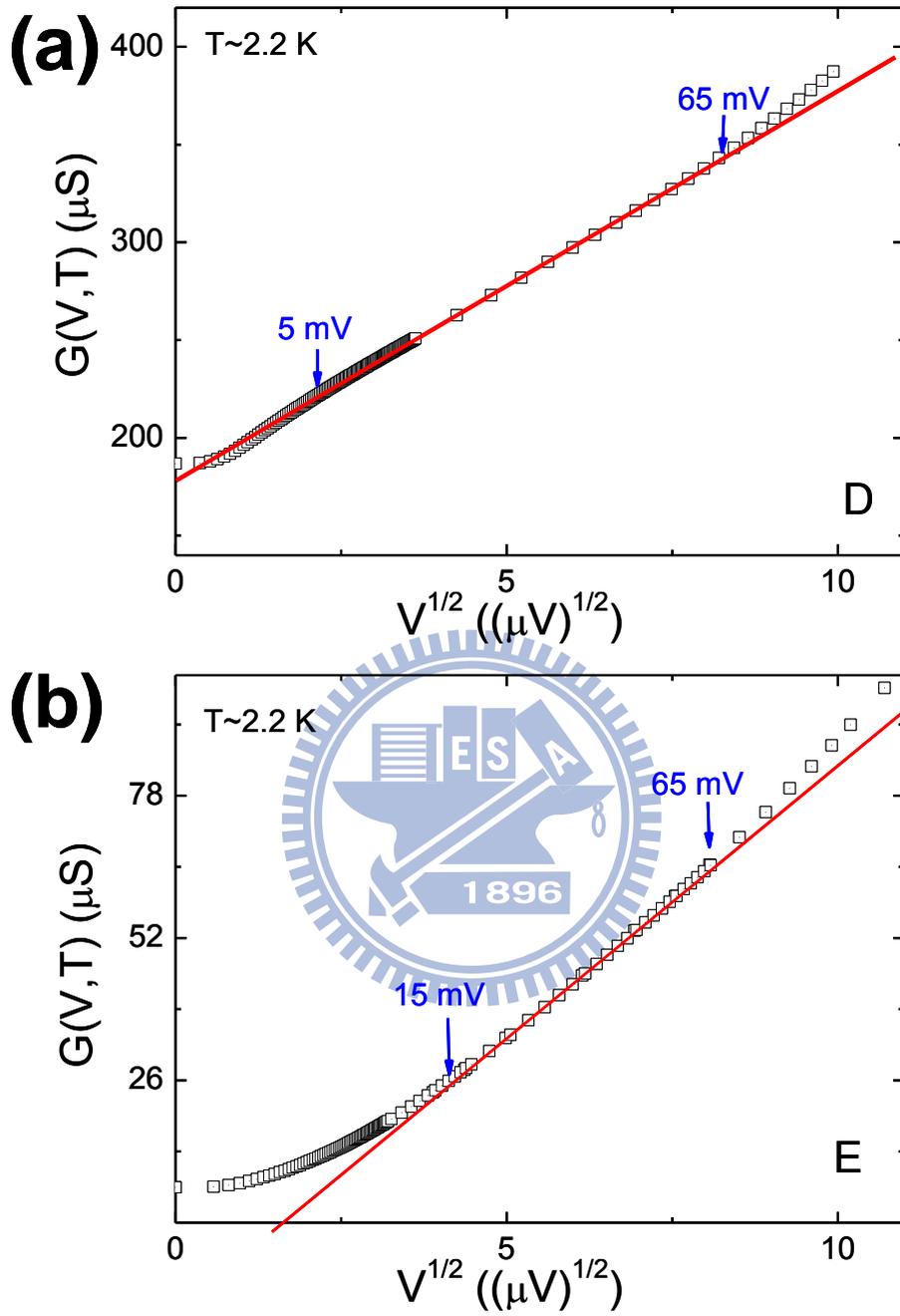


圖 6-3 樣品編號 D、E 之 $G(V,T) - \sqrt{V}$ 圖。由圖中可以觀察出在偏壓 $\sim 5-65$ mV

$$G(V,T) \propto \sqrt{V}。$$

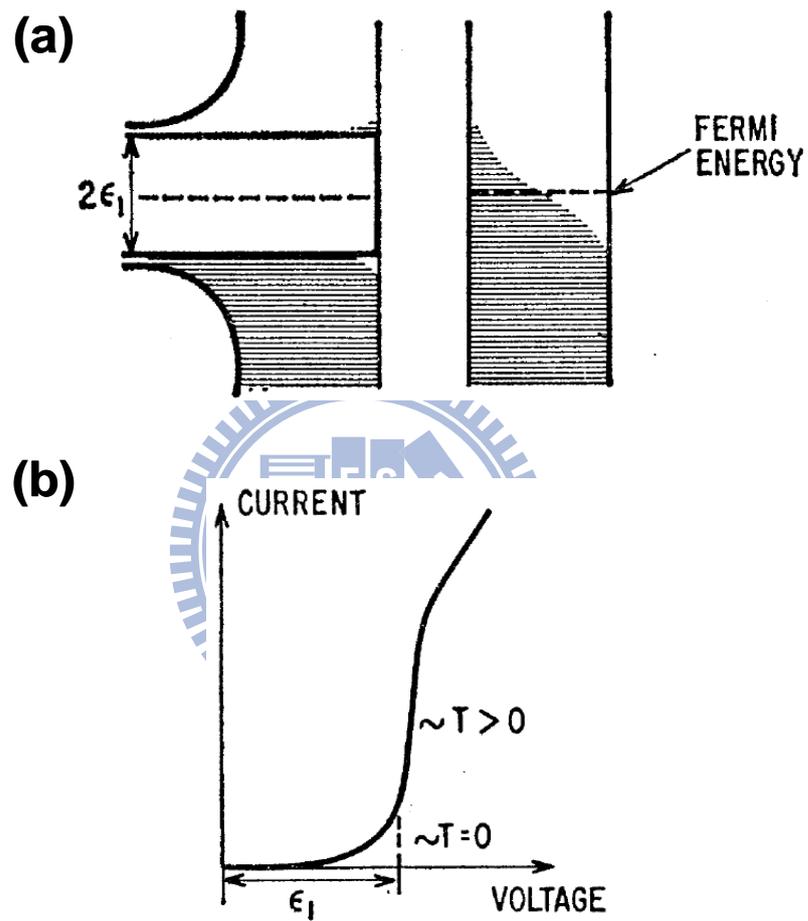


圖 6-4 超導能隙示意圖。(a) 超導能隙示意圖，(b) 受超導能隙影響的穿隧電流。[29]

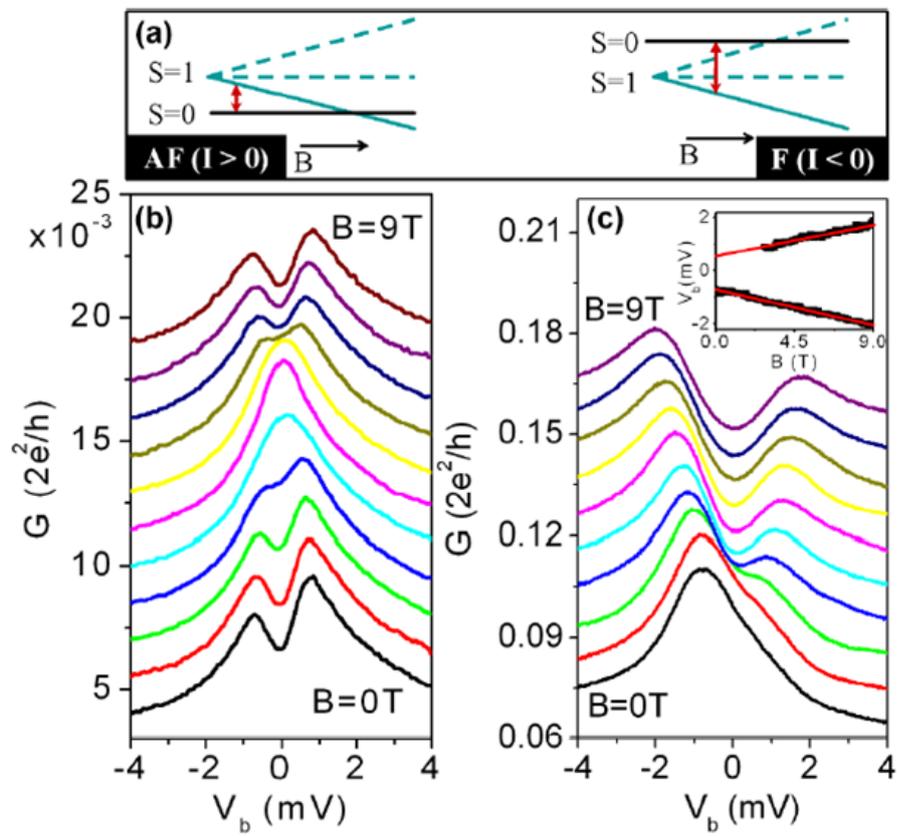


圖 6-5 雜質間不同耦合類型其微分電導對磁場變化的行為。左圖：反鐵磁性耦合，右圖：鐵磁性耦合。[27]

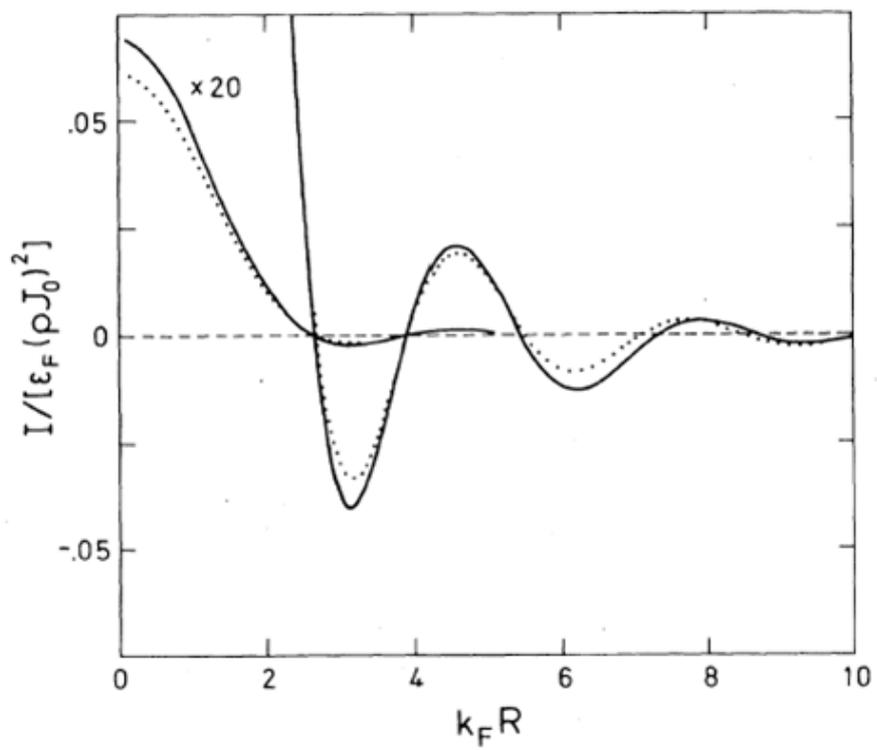


圖 6-6 雜質間的距離與 RKKY 交互作用類型的關係。[28]

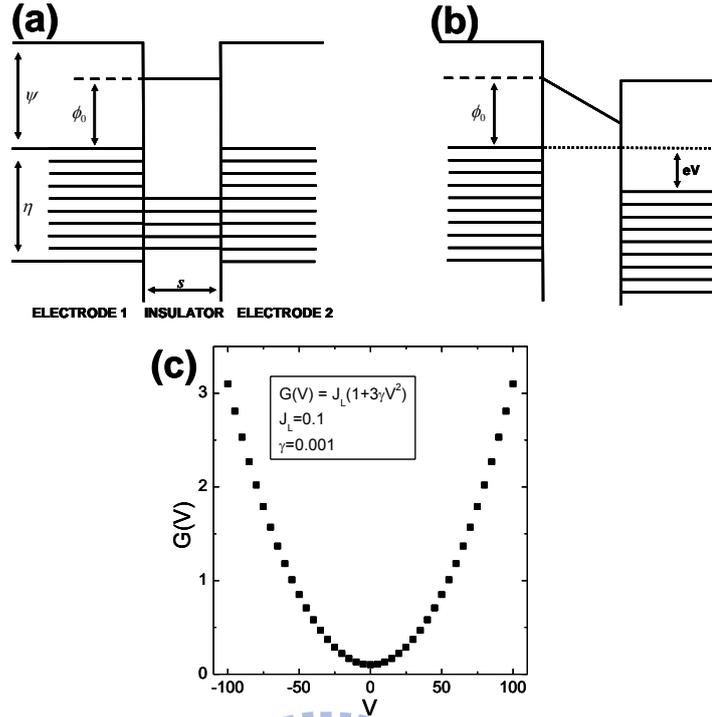


圖 6-7 一般方型位壘穿隧電流之理論計算[30]。(a) 計算之模型在不加偏壓 $V=0$ 之示意圖，(b) 計算之

模型外加一偏壓 eV 之示意圖。經由 WKB 之近似計算其穿隧淨電子流密度為 $j_e(V) = j_e(0)$

$$\times \left\{ \bar{\varphi} \exp(-A\bar{\varphi}^{-1/2}) - (\bar{\varphi} + eV) \exp[-A(\bar{\varphi} + eV)^{1/2}] \right\}, \text{ 其中 } J_0 = e/2\pi\hbar(\beta\Delta s)^2. \text{ 上式可解釋}$$

為電子流由電極 1 流到 2 為 $j_e(0) \times \bar{\varphi} \exp(-A\bar{\varphi}^{-1/2})$ ，由電極 2 流到 1 為

$j_e(0) \times (\bar{\varphi} + eV) \exp[-A(\bar{\varphi} + eV)^{1/2}]$ ，所以淨電子流為兩項相減。考慮小偏壓範圍

$eV < \phi_0$ ，這裡的 ϕ_0 為一個方形位能障的高度，則 $\bar{\varphi} = (\phi_0 - eV/2)$ ，代入穿隧淨電子流密度

方程式，對其作泰勒展開並取適當的近似，最後可以得到在小偏壓下穿隧電流的結果為

$$J(V) = J_L(V + \gamma V^3), \text{ 其中 } J_L = \frac{3}{2} \frac{e^2 (2m\phi_0)^{1/2}}{h^2 s} \exp[-A\phi_0^{1/2}], \gamma = \frac{(Ae^2)}{96\phi_0} - \frac{Ae^2}{32\phi_0^{3/2}}. \text{ 因}$$

此可以得到微分電導為 $G(V) \equiv \frac{dJ}{dV} = J_L(1 + 3\gamma V^2)$ ，微分電導為一以零偏壓為中點之拋物

線。(c) 為 $G(V)$ 對偏壓 V 之模擬數據。

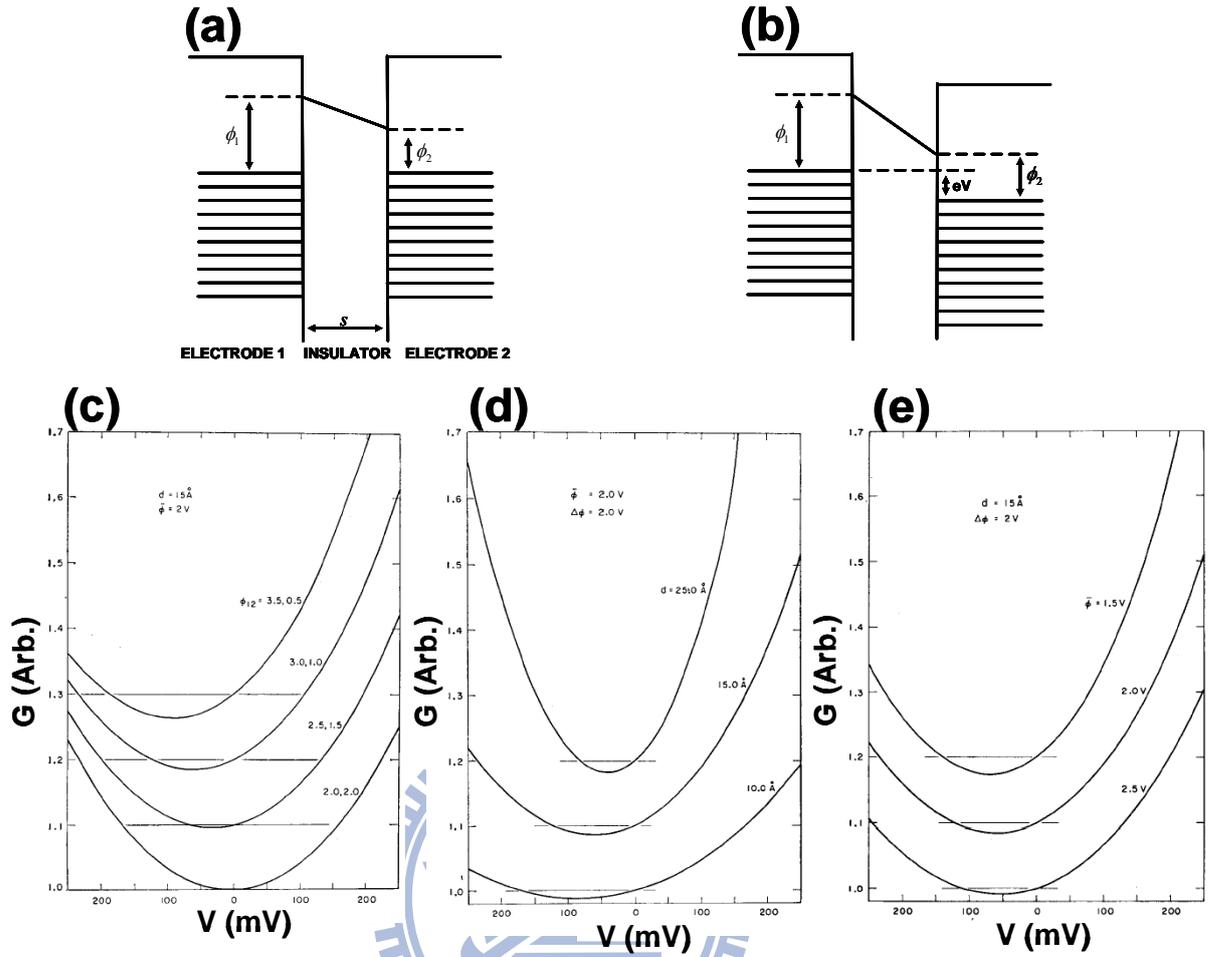


圖 6-8 BDR 模型[31]。(a) 不對稱位壘(barrier)的模型(即 BDR model)在 $V = 0$ 之示意圖，(b) 不對稱位壘的模型(即 BDR model)在外加一偏壓 eV 之示意圖。經由 WKB 近似計算此模型的穿隧電流密度為 $j = \frac{2e}{h} \sum_{k_x} \int_{-\infty}^{\infty} \exp\left(-\frac{2}{\hbar} \int_0^d \{[\varphi(x, V) - E_x]2m\}^{1/2} dx\right) \times [f(E) - f(E - eV)] dE_x$ ，其中 $\varphi(x, V) = \varphi_1 + (x/d)(\varphi_2 - eV - \varphi_1)$ 。在 $\Delta\varphi/\bar{\varphi} < 1$ 的極限下(其中 $\Delta\varphi = \varphi_2 - \varphi_1$ ， $\bar{\varphi}$ 為平均位壘高度)，其微分電導定義為 $\frac{dj}{dV} \equiv G(V) = G(0) \left\{ 1 - \left(\frac{A_0 \Delta\varphi}{16\bar{\varphi}^{3/2}} \right) eV + \left(\frac{9}{128} \frac{A_0^2}{\bar{\varphi}} \right) (eV)^2 \right\}$ (其中 $A_0 = 4(2m)^{1/2} d/3\hbar$ ， d 為位壘厚度，若要套用此數值結果單位要用 \AA)，由式可知其為一中心對零偏壓有偏移的拋物線方程(與圖 6-7 比較)。由上式可以定性的歸納出幾個結果：(c) 位壘愈不對稱，偏移量越多。(d) 位壘(絕緣層)越厚，偏移量越少。(e) 位壘平均高度愈高，偏移量越少。

參考文獻

- [1] J. Kondo, *Prog. Theo. Phys.* **32**, 37 (1964).
- [2] P. Nozieres, *J. Temp. Phys.* **17**, 31 (1974).
- [3] D. L. Cox and A. Zawadowski, *Adv. Phys.* **47**, 599 (1998)
- [4] A. I. Toth, L. Borda, J. von Delft, and G. Zarand, *Phys. Rev. B* **76**, 155318 (2007).
- [5] B. A. Jones and C. M. Varma, *Phys. Rev. Lett.* **58**, 843 (1987).
- [6] B. A. Jones, C. M. Varma, and J. W. Wilkins, *Phys. Rev. Lett.* **61**, 125 (1988).
- [7] C. H. Chung, and W. Hofstetter, *Phys. Rev. B* **76**, 045329 (2007).
- [8] G. Zarand, C. H. Chung, P. Simon, and M. Vojta, *Phys. Rev. Lett.* **97**, 166802 (2006).
- [9] D. C. Ralph, A. W. W. Ludwig, J. von Delft, and R. A. Buhrman, *Phys. Rev. Lett.* **72**, 1064 (1994)
- [10] R. M. Potok, I. G. Rau, H. Shtrikman, Y. Oreg and D. Goldhaber-Gordon, *Nature* **446**, 167 (2007).
- [11] H. Jeong, A. M. Chang, M. R. Melloch, *Science* **293**, 2221 (2001).
- [12] J. C. Chen, A. M. Chang, M. R. Melloch, *Phys. Rev. Lett.* **92**, 176801 (2004).
- [13] S. S. Yeh and J. J. Lin, *Phys. Rev. B* **79**, 012411 (2009)
- [14] S. S. Yeh and J. J. Lin, *Phys. Rev. B* **72**, 024204 (2005).
- [15] D. Goldhaber-Gordon, J. Gores, and M. A. Kastner, *Phys. Rev. Lett.* **81**, 5225 (1998).
- [16] T. A. Costi, L. Bergquist, A. Weichselbaum, J. von Delft, T. Micklitz, and A. Rosch, *Phys. Rev. Lett.* **102**, 056802 (2009).
- [17] A. F. G. Wyatt, *Phys. Rev. Lett.* **13**, 401(1964).
- [18] J. Appelbaum, *Phys. Rev. Lett.* **17**, 91(1966).
- [19] J. Appelbaum, *Phys. Rev.* **154**, 633(1967).
- [20] E. L. Wolf and D. L. Losee. *Phys. Rev. B* **2**, 3660(1970).
- [21] A. Schiller and S. Hershfield, *Phys. Rev. B* **51**, 12896 (1995).

- [22] M. Grobis, I. G. Rau, R. M. Potok, H. Shtrikman, and D. Goldhaber-Gordon, *Phys. Rev. Lett.* **100**, 246601 (2008).
- [23] S. S. Yeh, Ph.D. thesis, National Chiao Tung University (2007).
- [24] J. Bardeen, L. N. Cooper, and J. R. Schrieffer, *Phys. Rev.* **108**, 1175 (1957).
- [25] M. H. Hettler, J. Kroha, and S. Hettler, *Phys. Rev. Lett.* **73**, 1967 (1994).
- [26] A. Oguri, *J. Phys. Soc. Jpn.* **74**, 110 (2005).
- [27] H. B. Heersche, Z. de Groot, J. A. Folk, L. P. Kouwenhoven, and H. S. J. van der Zant, A. A. Houck, J. Labaziewicz, and I. L. Chuang, *Phys. Rev. Lett.* **96**, 017205 (2006).
- [28] C. Jayaprakash, H. R. Krishna-murthy, and J. W. Wilkins, *Phys. Rev. Lett.* **47**, 737 (1981).
- [29] I. Giaever and K. Megerle, *Phys. Rev.* **122**, 1101 (1961).
- [30] J. G. Simmons, *J. Appl. Phys.* **34**, 1793 (1963).
- [31] W. F. Brinkman, R. C. Dynes, and J. M. Rowell, *J. Appl. Phys.* **41**, 1915 (1970).
- [32] E. Sela, *arXiv: 0906.3729v1* [cond-mat.mes-hall] (2009).
- [33] G. D. Scott, Z. K. Keane, J. W. Ciszek, J. M. Tour, and D. Natelson, *Phys. Rev. B* **79**, 165413 (2009).
- [34] 洪舜治，「鋁/氧化鋁/鈮穿隧接點之微分電導之研究」，國立交通大學，碩士論文，民國九十六年。